

**Espacenet**

Bibliographic data: TW 419929 (B)

Electroluminescent assemblies containing boron chelates

Publication date: 2001-01-21
Inventor(s): HEUER HELMUT-WERNER [DE]; WEHRMANN ROLF [DE]; ELSCHNER ANDREAS [DE]
+
Applicant(s): BAYER AG [DE] +
- **international:** C09K11/06; H01L51/30; H01L51/50; H05B33/14; (IPC1-7): H05B33/14
Classification: C09K11/06; H01L51/00M12D2; H01L51/00M2B2B;
- European: H01L51/00M6F; H01L51/50E
Application number: TW19990110272 19990621
Priority number (s): DE19981029947 19980704
Also published as:

- EP 0969531 (A2)
- EP 0969531 (A3)
- US 6287713 (B1)
- KR 20000011462 (A)
- JP 2000150163 (A)
- more

Abstract of TW 419929 (B)

Electroluminescent assembly comprising a substrate, an anode, an electroluminescent element and a cathode, where at least one of the two electrodes is transparent in the visible spectral region and the electroluminescent element contains one or more zones selected from the group consisting of hole injection zone, hole transport zone, electroluminescent zone, electron transport zone and electron injection zone in the order specified, where each of the zones present may also assume functions of the other zones mentioned, characterized in that the electroluminescent element contains a boron complex of an 8-hydroxyquinoline derivative.

Last updated: 26.04.2011 Worldwide Database 5.7.23; 92p

公告本

申請日期	88. 6. 21
案 號	88110272
類 別	H25B 33/4

(以上各欄由本局填註)

A4

C4

419929

發明專利說明書

一、發明 新 型 名 稱	中 文	含有硼螯合物之電致發光組件
	英 文	Electroluminescent assemblies containing boron chelates
二、發明 人 創 作	姓 名	1. 赫維那 Helmut Werner HEUER 2. 衛洛夫 Rolf WEHRMANN 3. 艾安德斯 Andreas ELSCHNER 1—3. 皆德國人民
	國 籍	1. 德國可列菲德城 47829 凱斯坦街 7 號 Kastanienstr. 7, 47829 Krefeld, Germany 2. 德國可菲德城 47800 塞伯街 101 號 Scheiblerstr. 101, 47800 Krefeld, Germany 3. 德國木汗城 45479 利得街 6 號 Lederstr. 6, 45479 Mulheim, Germany
三、申請人	姓 名 (名稱)	德商拜耳廠股份有限公司 Bayer Aktiengesellschaft
	國 籍	德國
	住、居所 (事務所)	德國利佛可生城拜耳工業區 D 51368 D 51368 Leverkusen, Bayerwerk, Federal Republic of Germany
	代表人 姓 名	白羅夫 (Dr. Rolf Braun) 羅勞斯 (Dr. Klaus Reuter)

419929

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大類：
IPC分類：

A6

B6

本案已向：

國(地區) 申請專利，申請日期： 案號： 有 無主張優先權
 德 西元 1998 年 7 月 4 日 19829947.8

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

有關微生物已寄存於： 寄存日期： 寄存號碼：

419929

A7
B7

五、發明說明 ()

電致發光(EL)組件特徵為其在被施加電位能時放射光及電流流動。此組件長久以來在業界以名稱"光放射二極體"(LED)而為已知的。光放射由正電荷(電洞)與負電荷(電子)之重組產生光放射而造成。

在用於電子或光電之光放射組件之發展中，目前主要使用無機半導體，如砷化鎵。點形顯示構件可基於此物質而製造。大面積組件為不可能的。

除了光放射半導體二極體，以蒸氣沈積低分子量有機化合物為主之電致發光組件為已知的(US-A 4 539 507，US-A 4769 262，US-A 5077 142，EP-A 0 406 762，EP-A 0 278 758，EP-A 0 278 757 專利)。

此外，如聚(對-亞苯基)與聚(對-亞苯基-乙烯基)(PPVs)之聚合物已被敘述為電致發光聚合物：G. Leising 等人之 Adv. Mater. 4 (1992)第 1 期；Friend 等人之 J. Chem. Soc., Chem. Commun. 32 (1992)；Saito 等人之 Polymers, 1990 第 31 卷，1137；Friend 等人之 Physical Review B, 第 42 卷，第 18 期，11670，或 WO 90/13148 專利。PPV 在電致發光顯示器之進一步實例敘述於 EP-A 0 443 861，WO-A 92/03490 與 92/03491 專利。

EP-A 0 294 061 專利揭示一種基於聚乙炔之光學調節器。

為了製造撓性聚合物 LEDs，Heeger 等人已提議可溶性，共軛 PPV 衍生物(WO-A 92/16023 專利)。

類似地已知不同組合物之聚合物摻合物：M. Stolka

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝打

文

419929

A7

B7

五、發明說明 (²)

等人之 Pure & Appt. Chem. , 第 67 卷, 第 1 期, 第 175-182 頁, 1995 ; H. Bässler 等人之 Adv. Mater. 1995, 7, 第 6 期, 551 ; Nagai 等人之 Appl. Phys. Lett. 67 (16), 1995, 2281 ; EP-A 0 532 798 專利。

有機 EL 組件通常含有一或更多層，其包含有機電荷運輸化合物。一般結構按層之順序如下：

- 1 撐體，基質
- 2 基底電極
- 3 電洞注射層
- 4 電洞運輸層
- 5 光放射層
- 6 電子運輸層
- 7 電子注射層
- 8 上電極
- 9 接點
- 10 蓋，封包。

第 3 至 7 層表示電致發光構件。

此結構表示最常見之情形，而且可簡化為忽略個別層使得以一層呈現多種功能。在最簡單之情形，EL 組件包含兩個電極，其間安置有一個有機層，其滿足所有之功能，包括光之放射。此系統敘述於，例如，基於聚(對-亞苯基-乙烯基)之申請案 WO-A 90/13148。

多層系統可藉蒸氣沈積法建立，其中層連續地由氣相施加，或藉鑄製法。由於較快之處理速度，鑄製法較佳。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

一裝
訂

419929

A7
B7

五、發明說明()

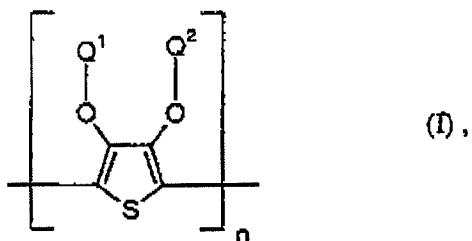
然而，在特定之情形，已施加之層在次一層施加於其上時之部份溶液為困難之處。

本發明之目的為提供具有高光通量之電致發光組件，其中使用在習用溶劑具有改良溶解度之新穎硼錯合物或螯合物作為放射體及/或電子導體。這些新穎之硼錯合物亦可藉蒸汽沈積法由氣相施加。

已發現下述含有硼錯合物之電致發光組件符合這些需求。在以下，名詞"區"等於名詞"層"。

本發明因此提供電致發光組件，其包含基質，陽極，電致發光構件，與陰極，其中兩個電極至少之一在可見光譜區域為透明的，而且電致發光構件含有一或更多個區，其以指定之順序選自包括電洞注射區，電洞運輸區，電致發光區，電子運輸區，與電子注射區，其中存在之各區亦可呈現上述其他區之功能，其特徵為電致發光構件含有8-羥基喹啉衍生物之硼錯合物。

電洞注射區較佳為含有式(I)之不帶電或陽離子性聚噻吩



其中

Q¹與Q²彼此獨立地表示氫，經取代或未取代(C₁-C₂₀)-烷

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

419929

A7

B7

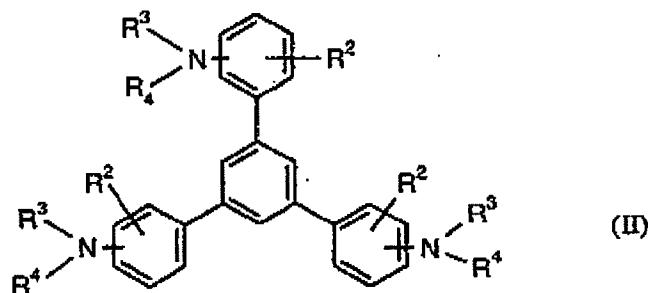
五、發明說明 (4)

基， CH_2OH 或 $(\text{C}_6\text{-C}_{14})$ -芳基，或
 Q^1 與 Q^2 一起表示 $-(\text{CH}_2)_m-\text{CH}_2-$ (其中 $m = 0$ 至 12，較佳為
1 至 5)， $(\text{C}_6\text{-C}_{14})$ -亞芳基，及
 n 表示 2 至 10,000 之整數，較佳為 5 至 5000。

鄰接電洞注射區之電洞導電區較佳為含有一或更多種
芳族第三胺基化合物，較佳為經取代或未取代三苯基胺化
合物，特佳為式(II)之 1,3,5- 參(胺基苯基)苯化合物。

位於電洞注射區與陰極之間之區亦可呈現多種功能，
即，一個區可含有，例如，電洞注射，電洞運輸，電致發
光，電子運輸及/或電子注射物質。

電致發光構件可另外含一或更多種透明合黏合劑。
經取代或未取代之 1,3,5- 參(胺基苯基)苯化合物較佳
為表示通式(II)之芳族第三胺基化合物



其中

R^2 表示氫，經取代或未取代烷基或鹵素，

R^3 與 R^4 彼此獨立地表示經取代或未取代 $(\text{C}_1\text{-C}_{10})$ -烷基，以
烷氧基羰基取代之 $(\text{C}_1\text{-C}_{10})$ -烷基，或經取代或未取代芳
基，芳烷基或環烷基，

R^5 與 R^6 較佳為彼此獨立地表示 $(\text{C}_1\text{-C}_6)$ -烷基，特別是甲

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

419929

A7
B7

五、發明說明 (5)

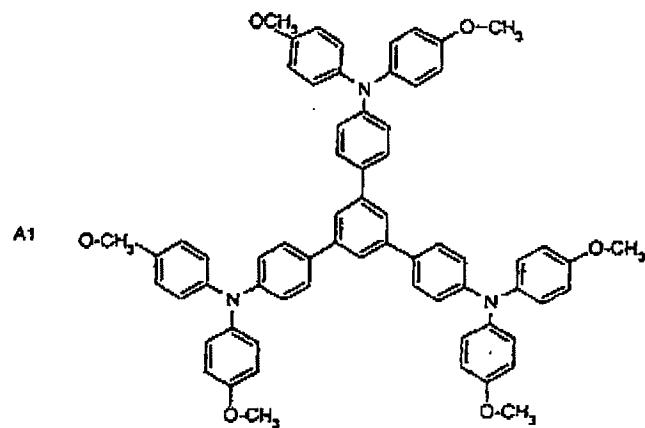
基，乙基，正-或異-丙基、正-、異-、第二-或第三-丁基，(C₁-C₄)-烷氧基羰基-(C₁-C₄)-烷基，例如，甲氧基羰基-、乙氧基羰基-、丙氧基羰基-或丁氧基羰基-(C₁-C₄)-烷氧基，或未取代或以(C₁-C₄)-烷基及/或(C₁-C₄)-烷氧基取代之苯基-(C₁-C₄)-烷基，萘基-(C₁-C₄)-烷基，環戊基，環己基，苯基或萘基。

特佳為，R³與R⁴彼此獨立地表示未取代苯基，或以一至三個甲基，乙基，正-、異-丙基，甲氧基，乙氧基，正-及/或異-丙氧基取代之苯基或萘基。

R²較佳為表示氫，(C₁-C₆)-烷基，例如，甲基，乙基，正-或異-丙基，正-、異-、第二-或第三-丁基，或氯。

此化合物及其製備敘述於 US-A 4 923 774 專利以用於電子攝影術；此專利在此明確地併入本說明作為參考。例如，參-硝基苯基化合物可藉已知之催化氫化，例如，在雷氏鎳之存在下，轉化成參-胺基苯基化合物 (Houben-Weyl 4/1C, 14-102, Ullmann (4) 13, 135-148)。胺基化合物以一般已知方法反應經取代鹵苯。

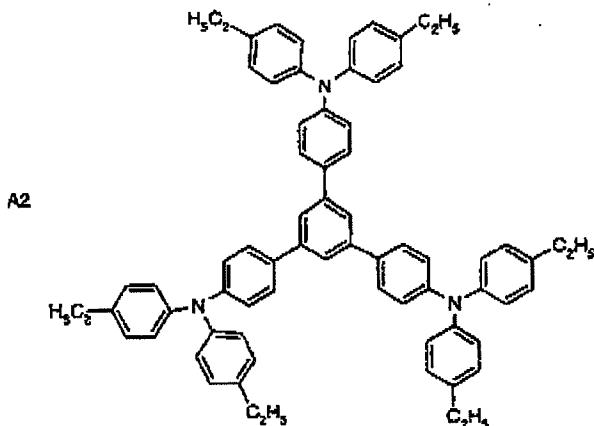
以實例之方式提及以下之化合物：



419929

A7
B7

五、發明說明(6)



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝訂

除了第三胺基化合物，其他之電洞導體，例如，具第三胺化合物之混合物之形式，亦可用於電致發光構件之建立。此其他之電洞導體一方面可為一或更多種式(II)之化合物，其包括異構物之混合物，或另一方面為電洞運輸化合物與具有通式(II)且具有各種構造之第三胺基化合物之混合物。

可能之電洞注射與電洞導體物質之保列示於 EP-A 0532798 專利。

在芳族胺之混合物之情形，化合物可以任何比例使用。

實例可提及：

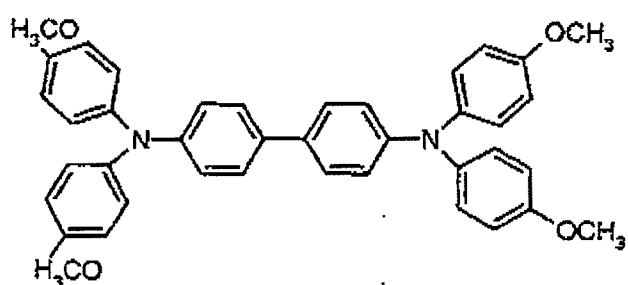
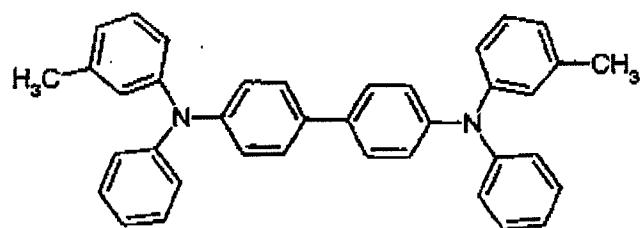
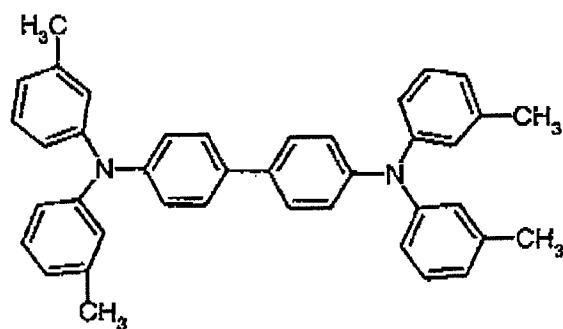
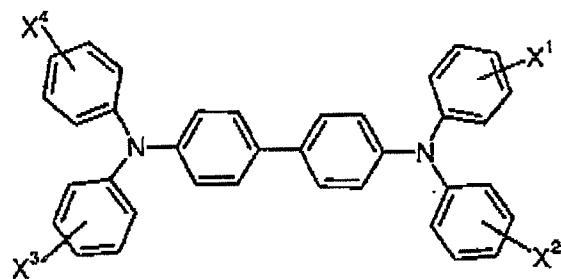
具有電洞導電性質而且可以純形式或如第三胺基化合物之混合對象使用之物質為，例如，以下之化合物，其中 X^1 至 X^6 彼此獨立地表示 H，鹵素，烷基，芳基，烷氧基，芳氧基。

419929

A7
B7

五、發明說明 ()

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝
訂

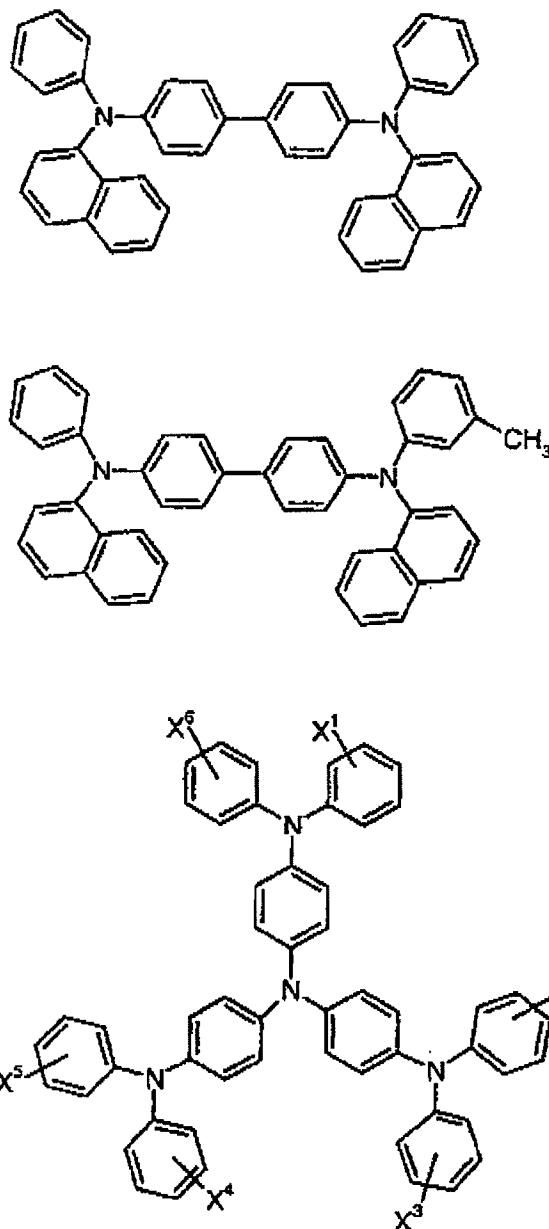
419929

A7
B7

五、發明說明 (8)

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝訂



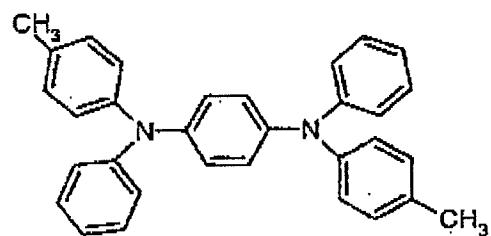
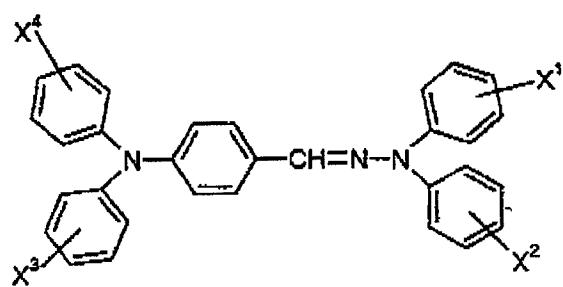
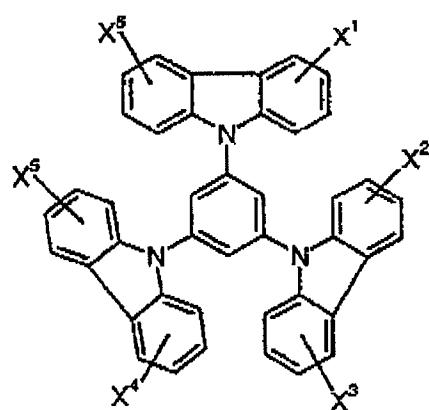
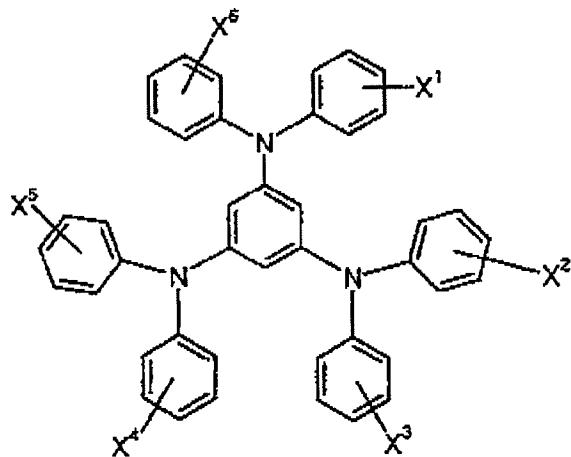
419929

A7
B7

五、發明說明(9)

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

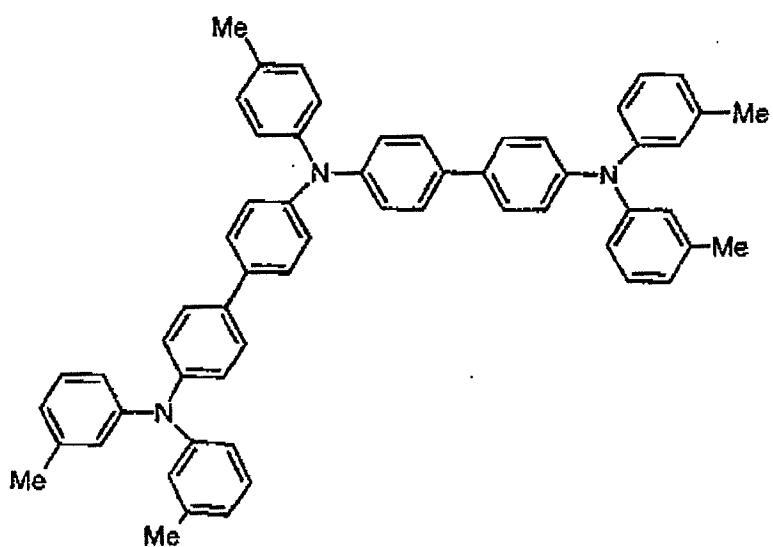
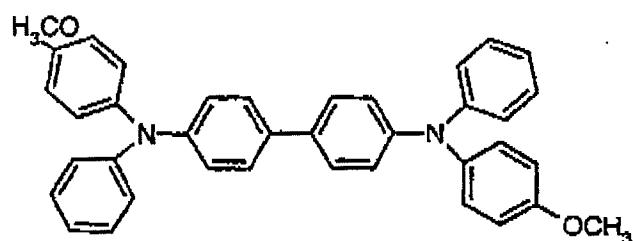
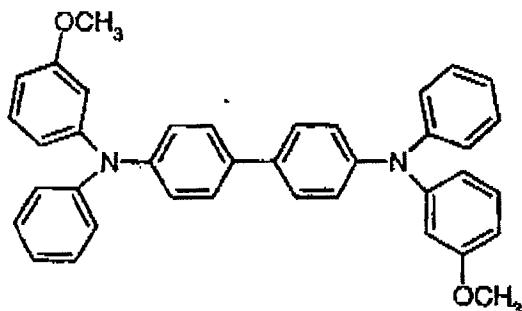
一裝一訂一綫



419929

A7
B7五、發明說明 (₁₀)

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝
打

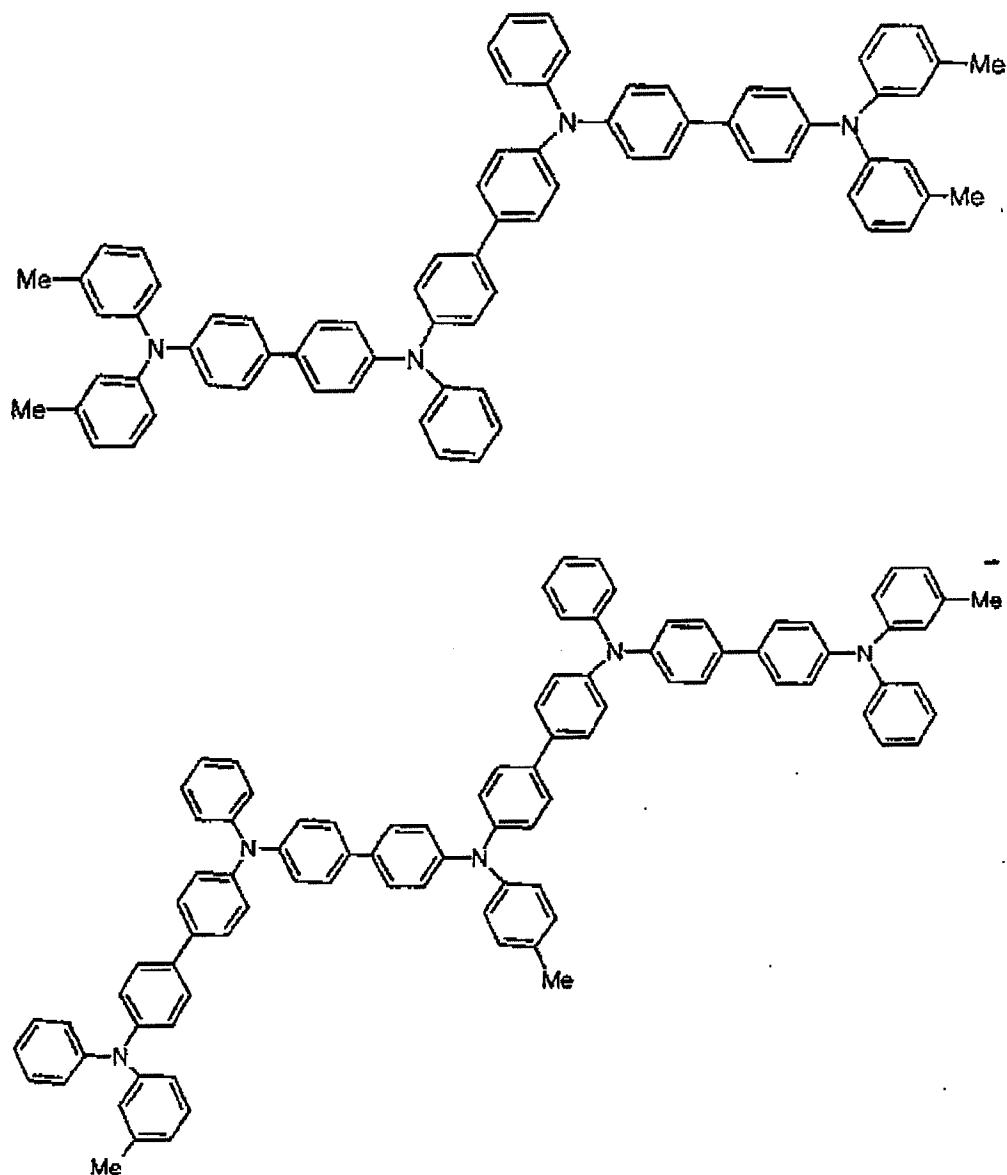
419929

A7
B7

五、發明說明 (11)

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝訂



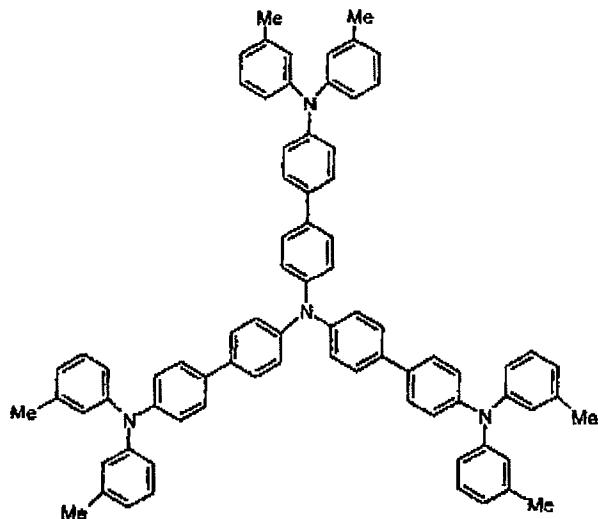
419929

A7

B7

五、發明說明 (₁₂)

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)



Me = 甲基

這些及進一步之實例敘述於 J. Phys. Chem. 1993, 97, 6240-6248 及 Appl. Phys. Lett., 第 66 卷, 第 20 期, 2679-2681。

通常, 可混合具有不同基本結構及/或不同取代樣式之各種胺。

X^1 至 X^6 較佳為彼此獨立地表示氫, 氟, 氯, 溴, (C_1-C_{10})-, 特別是(C_1-C_4)-烷基或-烷氧基, 苯基, 蒽基, 苯氧基及/或蒽氧基。芳環可以一、二、三或四個相同或不同之基團 X^1 至 X^6 取代。

具有式(I)之結構重複單元之聚噃吟為已知的(參考 EP-A 0440 958 與 0 339 340 專利)。依照本發明使用之分散液或溶液之製備敘述於 EP-A 0 440 957 與 DE-A 42 11 459 專利。

419929

A7

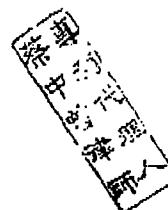
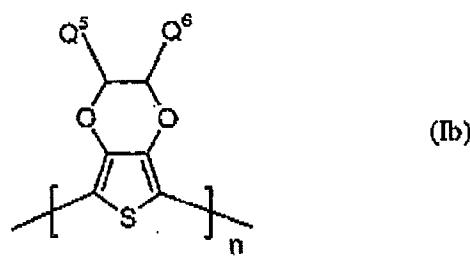
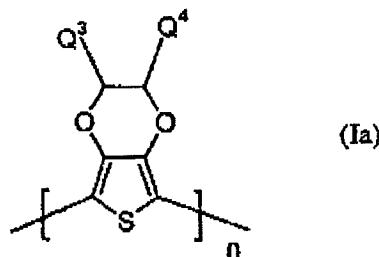
B7

五、發明說明 (13)

分散液或溶液中之聚噻吩較佳為以，例如，中性噻吩使用氧化劑之處理得到之陽離子性形式使用。如過氧化硫酸鉀之習用氧化劑用於氧化。氧化產生不在本式中之聚噻吩正電荷，因為其數量與位置無法明白地決定。其可在撐體上使用 EP-A 0339 340 專利所述之方法直接製備。

式(I)中之 Q^1 與 Q^2 較佳為 $-(CH_2)_m-CH_2-$ ，其中 $m = 1$ 至 3，非常特佳為乙烯。

較佳之陽離子性或中性聚二氧化噻吩包含式(Ia)或(Ib)之結構單元



其中

Q^3 與 Q^4 彼此獨立地表示氫，經取代或未取代 (C_1-C_{18}) -烷基，較佳為 (C_1-C_{10}) -，特佳為 (C_1-C_6) -烷基， (C_2-C_{12}) -烯基，較佳為 (C_2-C_8) -烯基， (C_3-C_7) -環烷基，較佳為環戊基或環己基， (C_7-C_{15}) -芳烷基，較佳為苯基- (C_1-C_4) -烷基， (C_6-C_{10}) -芳基，較佳為苯基或萘基， (C_1-C_{18}) -烷氧基，較

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝訂

419929

A7
B7五、發明說明 (₁₄)

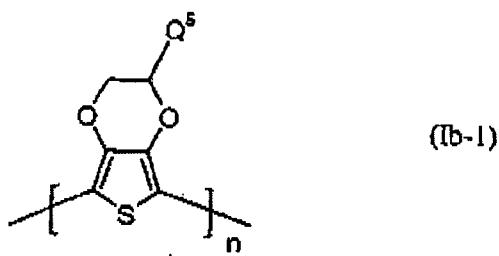
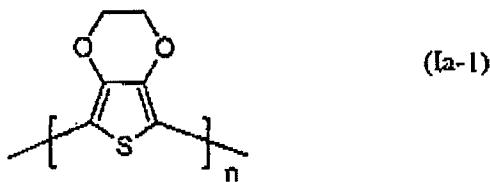
佳為(C₁-C₁₀)-烷氧基，較佳為甲氧基，乙氧基，正-或異-丙氧基，或(C₂-C₁₈)-烷氧基酯，及

Q⁵與Q⁶彼此獨立地表示氫或(C₁-C₁₈)-烷基，較佳為(C₁-C₁₀)-，特別是(C₁-C₆)-烷基，(C₂-C₁₂)-烯基，較佳為(C₂-C₈)-烯基，(C₃-C₇)-環烷基，較佳為環戊基或環己基，(C₇-C₁₅)-芳烷基，較佳為苯基-(C₁-C₄)-烷基，(C₆-C₁₀)-芳基，較佳為苯基或萘基，(C₁-C₁₈)-烷氧基，較佳為(C₁-C₁₀)-烷氧基，例如，甲氧基，乙氧基，正-或異-丙氧基，或(C₂-C₁₈)-烷氧基酯，其各以至少一個磺酸基取代，其中如果Q⁵表示氫，則Q⁶不為氫，反之亦同，及

n表示2至10,000之整數，較佳為5至5000。

特佳為式(Ia-1)與(Ib-1)之陽離子性或未帶電聚噻吩

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

第一
訂

其中

Q⁵與n如以上所定義。

為了平衡正電荷，聚噻吩之陽離子形式含有陰離子，較佳為聚陰離子。

419929

A7
B7

五、發明說明 (15)

存在之聚陰離子較佳為聚合羧酸之陰離子，如聚丙烯酸，聚甲基丙烯酸或聚順丁烯二酸，及聚合磺酸之陰離子，如聚苯乙烯磺酸與聚乙烯基磺酸。這些聚羧酸與聚磺酸亦可為乙烯基羧酸及乙烯基磺酸與如丙烯酸酯與苯乙烯之其他可聚合單體之共聚物。

聚苯乙烯磺酸之陰離子作為相對離子特佳。

形成聚陰離子之聚合酸之分子量較佳為 1000 至 2,000,000，特佳為 2000 至 500,000。聚合酸或其鹼金屬鹽為商業可得的，例如，聚苯乙烯磺酸與聚丙烯酸，或可藉已知方法製備(例如，參見 Houben-Weyl 之 Methoden der organischen Chemie，第 E 20 卷 Makromolekulare Stoffe，第 2 部(1987)，第 1141 頁以下)。

在為了聚二氧化噻吩與聚陰離子之分散液之形成而需要自由聚酸之處，亦可使用聚酸與對應量單酸之鹼土金屬鹽之混合物。

在式(Ib)與(Ib-1)之情形，聚二氧化噻吩在其苯身之單體單元載有正與負電荷。

如果需要，本發明之組件可含有聚合物及/或共聚物作為黏合劑，例如，聚碳酸酯，聚酯碳酸酯，苯乙烯之共聚物，如 SAN 或苯乙烯-丙烯酸酯，聚砜，以含乙烯基單體為主之聚合物，如聚(甲基)丙烯酸酯，聚乙烯基吡咯啶酮，聚乙烯基咔唑，乙酸乙烯酯及乙烯醇聚合物與共聚物，聚烯烴，環形聚烯烴共聚物，苯氧基樹脂等。亦可使用各種聚合物之混合物。聚合黏合劑具有 10,000 至

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝
訂

419929

A7

B7

五、發明說明 (16)

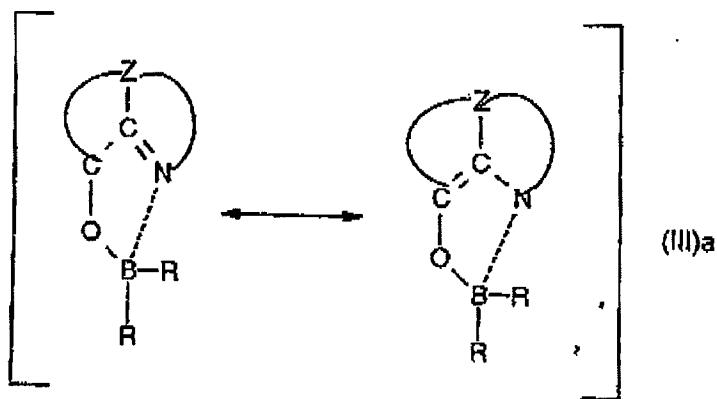
2,000,000 克/莫耳之分子量，為溶解性及成膜性，而且在可見光譜區域為透明的。其敘述於，例如，Encyclopedia of Polymer Science and Engineering，第 2 版，A. Wiley-Interscience 出版社。其通常基於致電發光構件之總重量以至多 95 重量%，較佳為至多 80 重量%之量使用。

硼錯合物(硼螯合物)較佳為通式(III)a 或(III)b 之化合物

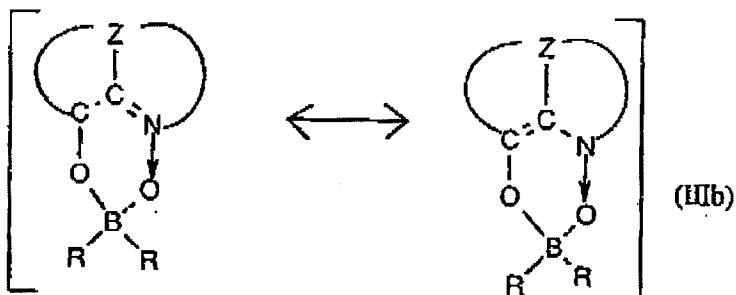
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂



及



其中

Z 在兩種形式中獨立地表示完成包含至少 2 個熔融環之原

419929

A7

B7

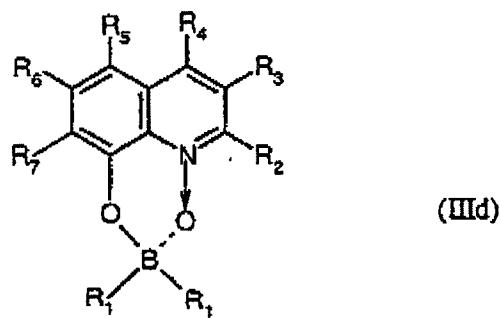
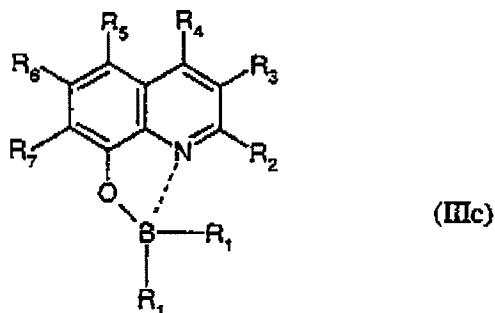
五、發明說明 (17)

子，及

R 表示芳基或 F 原子。

Z 完成雜環分子部份，其包含至少兩個熔融環，其一為吡咯或呋環，此外，加成脂族或芳族環可連接兩個熔融環。此外，其他之脂族基團或鹵素原子可連接環。

化合物(III)特佳為表示通式(IIIc)或(IIId)之化合物



其中

R₁ 表示經取代或未取代(C₆-C₁₀)-芳基或鹵素。

R₂、R₃、R₄、R₅、R₆與 R₇彼此獨立地表示氫，經取代或未取代(C₁-C₁₀)-烷基或鹵素或磷醯胺基或氨基或經取代或未取代胺基。

化合物(III)非常特佳為表示通式(IIIe)、(IIIf)或(IIIf)之化合物

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

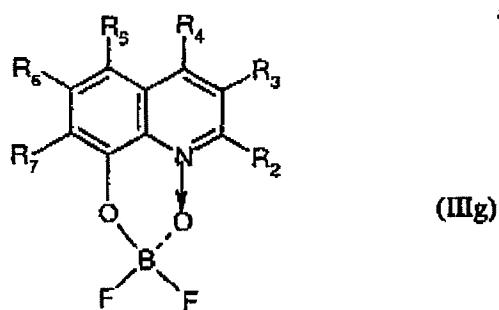
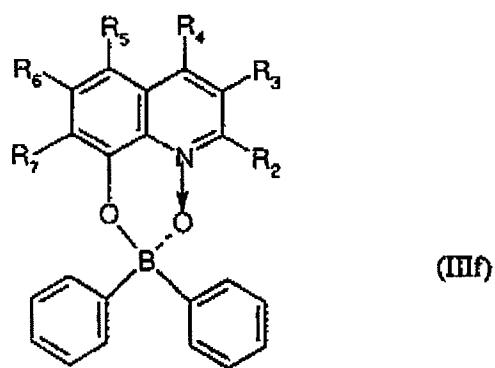
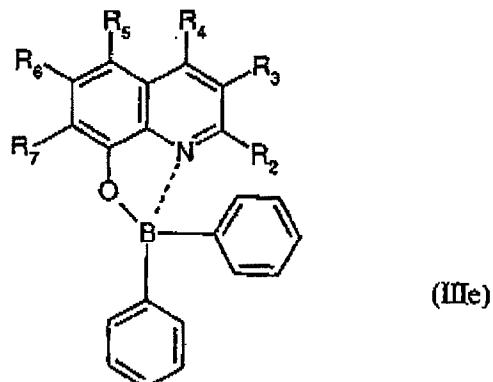
裝訂

419929

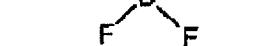
A7

B7

五、發明說明 (18)



其中



R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 與 R_7 特別地彼此獨立地表示氯，分支或未分支(C_1-C_{12})-烷基，例如，甲基、乙基或4-乙基-1-甲基辛基，或氯或磺醯胺基團或氨基或經取代胺基。

此化合物及其製備在作為螢光化合物之化學分析為已知的，而且敘述於，例如，E. Hohaus, F. Umland; *Chem. Ber.* 102 4025-4031 (1969)。

僅在溶劑之選擇不同之一般分析圖為：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

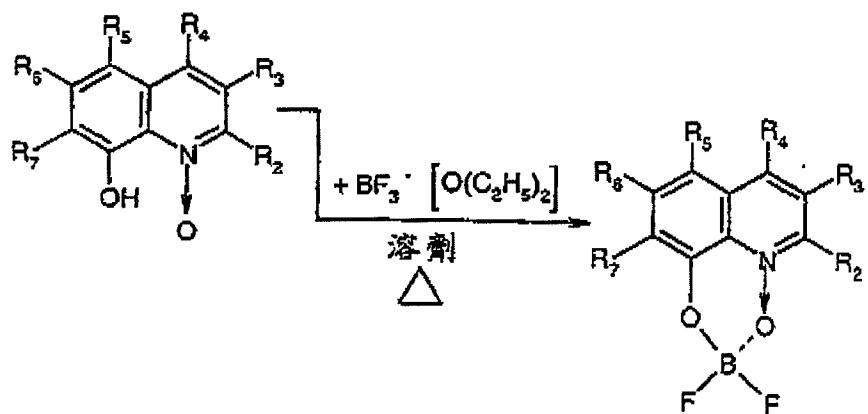
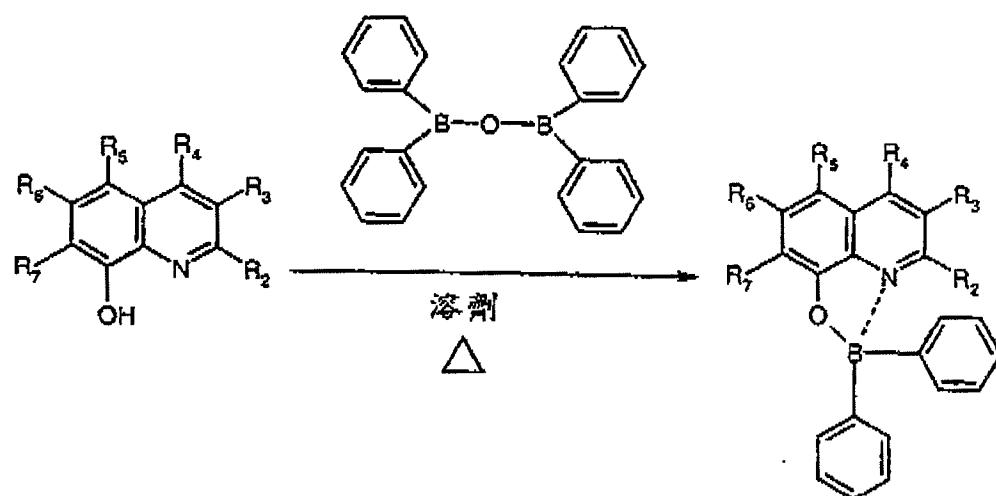
419929

A7
B7

五、發明說明 (19)

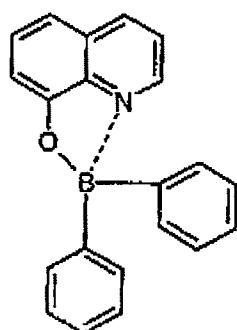
(諸先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝打



化合物(III)之實例如下：

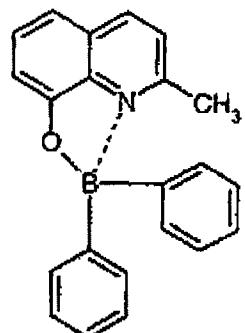
B1)



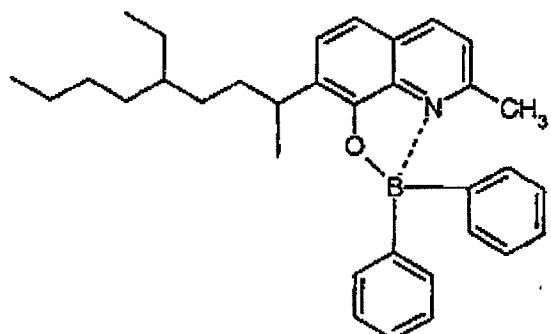
419929

A7
B7五、發明說明 (₂₀)

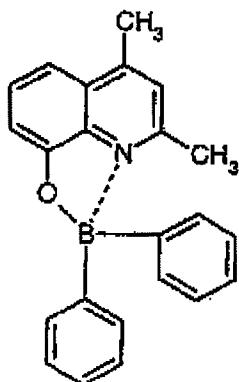
B2)



B3)



B4)



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

有

一

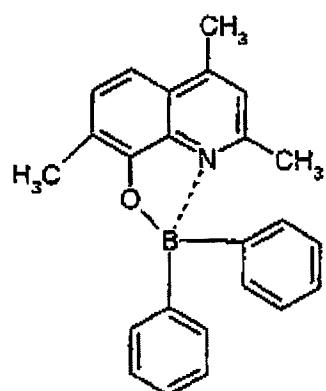
419929

A7
B7五、發明說明 ()
21

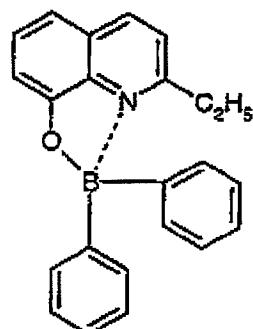
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

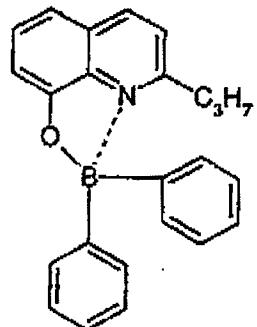
B5)



B6)



B7)



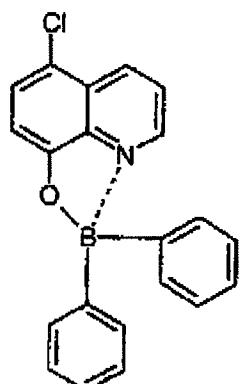
419929

A7
B7五、發明說明 (₂₂)

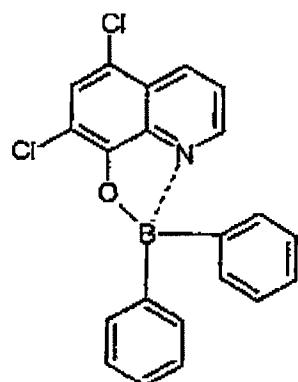
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝
訂

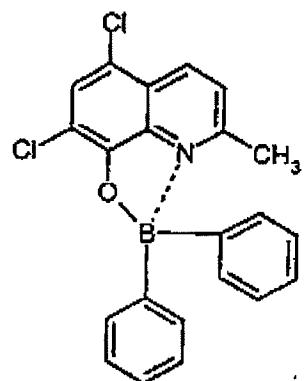
B8)



B9)



B10)



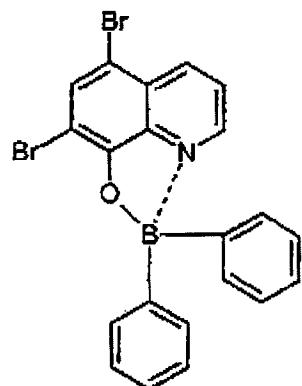
419929

A7
B7五、發明說明 (₂₃)

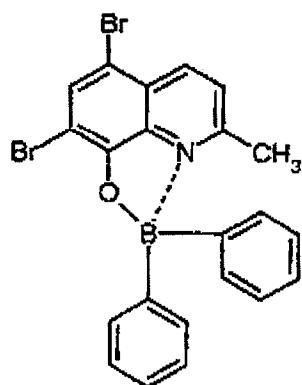
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝打

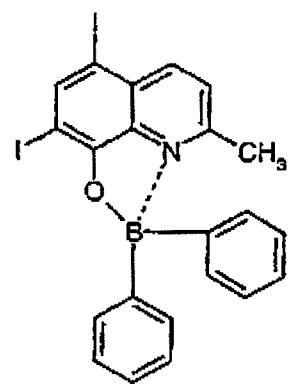
B11)



B12)



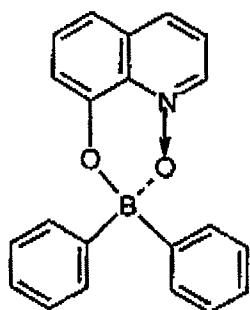
B13)



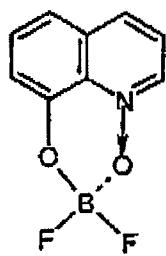
419929

A7
B7五、發明說明 (₂₄)

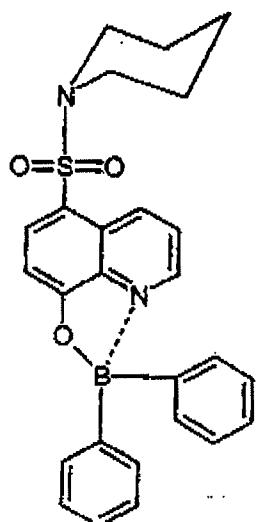
B14)



B15)



B16)



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝打

419929

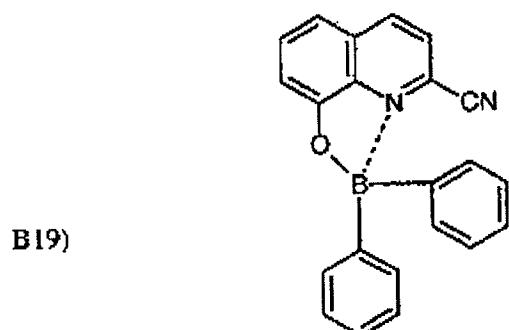
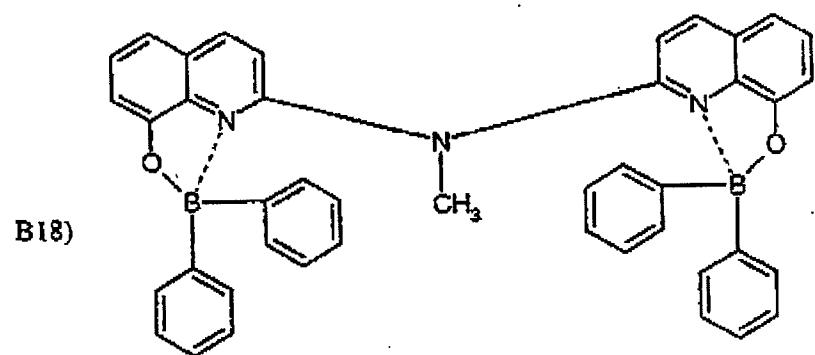
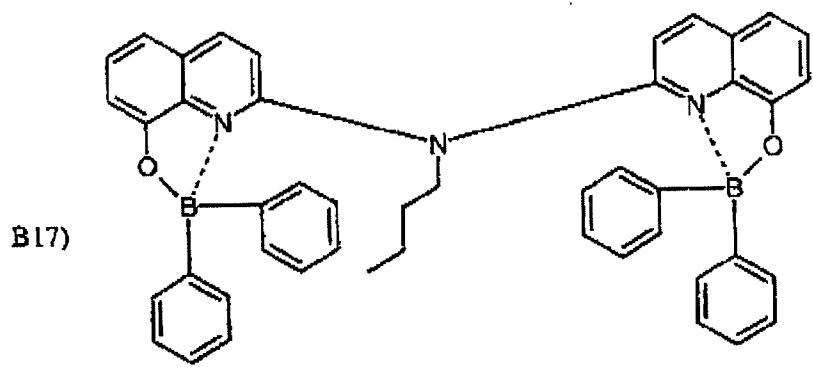
A7

B7

五、發明說明 (25)

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝訂線



419929

A7

B7

五、發明說明 (²⁶)

可使用一或更多種式 B1 至 B19 之化合物。

一些 8-羥基喹啉配位基為商業可得的，或其可藉已知方法或有機化學製備 (R. G. W. Hallingshead, 第 1 卷, 第 6 章, Butterworths, London (1954))。

為了製造電致發光構件，硼錯合物，如果需要，及第三胺基化合物與黏合劑溶於適當溶劑，並且藉鑄製，刀塗或旋塗塗佈於適當基質。然而，如果需要，硼錯合物亦可分別地藉蒸汽沈積法如層而塗佈。基質可為，例如，具有透明電極之玻璃或聚合物物質。至於聚合物物質，可使用，例如，聚碳酸酯，如聚對苯二甲酸乙二酯或聚苯二甲酸乙二酯之聚酯，聚碩或聚醯亞胺之膜。

適當之透明電極為

- 金屬氧化物，例如，銅-錫氧化物 (ITO)，錫氧化物 (NESA)，鋅氧化物，摻染之錫氧化物，摻染之鋅氧化物等，
- 半透明金屬膜，例如，Au、Pt、Ag、Cu 等，
- 導電性聚合物膜，如聚苯胺，聚噻吩等。

金屬氧化物電極及半透明金屬膜電極以如蒸汽沈積，噴鍍，鍍鉑等之技術如薄層而塗佈。導電性聚合物膜由溶液以如旋塗，鑄製，刀塗等之技術塗佈。

透明電極之厚度為 3 nm 至數 μ m，較佳為 10 nm 至 500 nm。

電致發光層如薄層直接塗佈於存在之透明電極或電荷運輸層。膜之厚度為 10 至 500 nm，較佳為 20 至 400

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝
訂

419929

A7
B7

五、發明說明 (27)

nm，特佳為 50 至 250 nm。

其他之電荷運輸層可在相對電極之塗佈前插在電致發光層上。

適當中間電荷運輸層(其可為電洞導體或電子導體物質而且可以聚合或低分子量形式存在，如果需要，如摻合物)之表列，示於 EP-A 0 532 798 專利。特別適合之電荷運輸物質特別為具有電洞運輸性質之經取代聚噻吩。其敘述於，例如，EP-A 0 686 662 專利。

低分子量電洞導體在聚合黏合劑中之含量可在 2 至 97 重量% 之範圍改變；此含量較佳為 5 至 95 重量%，特佳為 10 至 90 重量%，特別是 10 至 85 重量%。電洞注射或電洞導電區可藉各種方法沈積。

成膜電洞導體亦可以純形式使用(100%電洞導體)。如果需要，電洞注射或電洞導電區亦可含有定量之電致發光物質。

完全包括低分子量化合物之摻合物可蒸汽沈積；除了低分子量化合物亦含有黏合物之溶解性及成膜摻合物可由溶液藉由，例如，旋塗，鑄製或刀塗沈積。

亦可在電洞導電層上之分離層塗佈放射及/或電子導電物質。在此，放射物質亦可如摻染物而加入含有化合物 (II) 之層，此外，亦可塗佈電子導電物質。電致發光物質亦可加入電子注射或電子導電區。

低分子量電子導體在聚合黏合劑中之含量可在 2 至 95 重量% 之範圍改變；此含量較佳為 5 至 90 重量%，特佳

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝訂人

紙

419929

A7

B7

五、發明說明 (28)

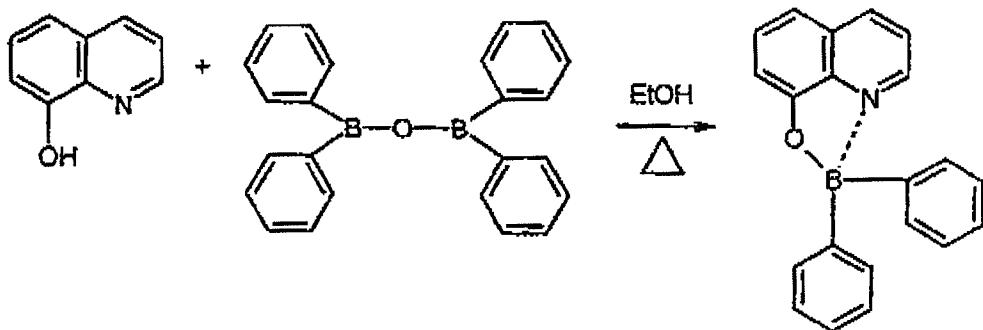
為 10 至 85 重量%。成膜電子導體亦可以純形式使用 (100%電子導體)。

相對電極包含導電性物質，其可為透明的。較佳為金屬，例如，Al，Au，Ag，Mg，In 等，或合金與其氧化物，其可藉如蒸汽沈積，噴鍍或鉑化之技術塗佈。

本發明之組件以兩個連接兩個電極之電引線(例如，金屬線)連接電源。

在施加 0.1 至 100 伏特之 DC 電位能時，組件放射具有 200 至 2000 nm 之波長之光。其顯示 200 至 2000 nm 範圍之光致發光。

本發明之組件適合用以製造光放射單位及顯示資訊之單位。

實例實例 1

0.5 克(3.44 莫耳)之新鮮再結晶 8-羥基喹啉與 1.19 克(3.44 莫耳)之二苯基硼酸酐及 120 毫升之無水乙醇一起置於反應容器中，而且在保護 N_2 氣氛下回流 2 小時。冷卻後數小時之後，黃色固體自溶液沈澱，其具有黃-綠色螢

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝
訂
綱

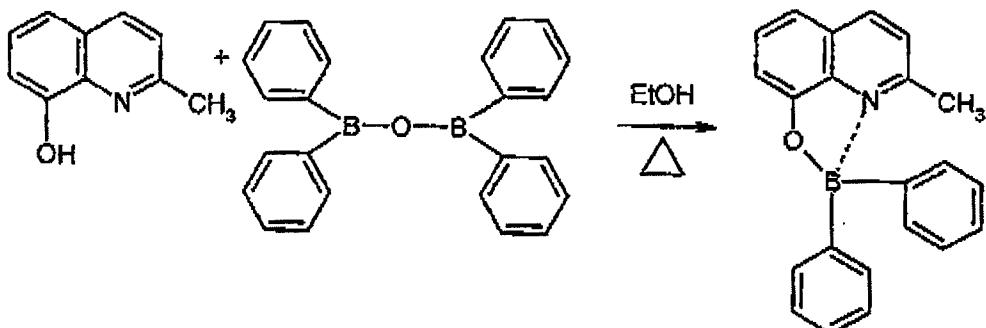
419929

A7
B7

五、發明說明 (29)

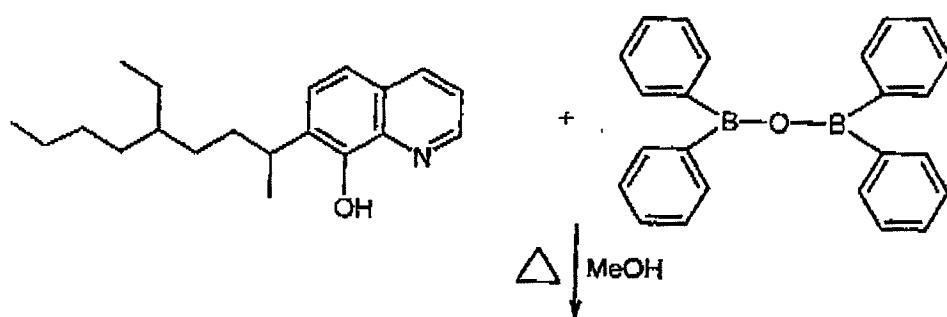
光；此固體可繼而由乙醇再結晶。乾燥後，得到 0.94 克（理論上 ≈ 88.4%）之具有強烈黃色之固體。此固體顯示強烈之黃-綠色固態螢光，而且充份地溶於甲醇。

實例 2



0.5 克 (3.44 莫耳) 之新鮮再結晶 8-羟基喹啉與 1.09 克 (3.14 莫耳) 之二苯基硼酸酐及 50 毫升之無水乙醇一起置於反應容器中，而且在保護 N_2 氣氛下回流 6 小時。冷卻後數小時之後，黃色固體自溶液沈澱，其具有黃-綠色螢光；此固體可繼而由乙醇再結晶。乾燥後，得到 0.9 克（理論上 ≈ 88.7%）之具有強烈黃色之固體。此固體顯示強烈之黃-綠色固態螢光，而且充份地溶於甲醇。

實例 3



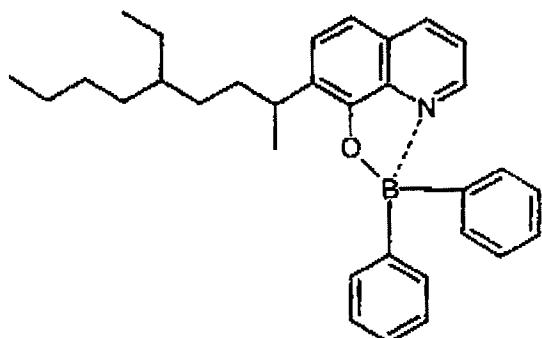
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

419929 3

A7

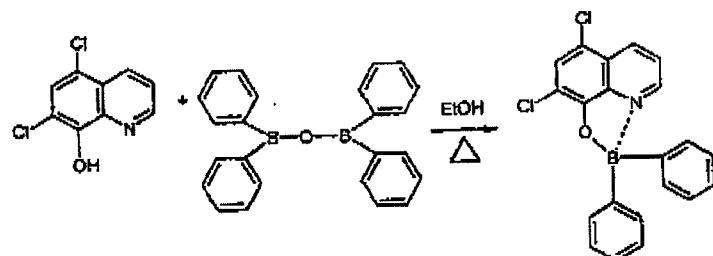
B7

五、發明說明 (30)



1 克(3.44 莫耳)之 7-(4-乙基-1-甲基辛基)-8-羥基喹啉，其已先以管柱層析術純化，與 1.16 克(3.34 莫耳)之二苯基硼酸酐及 100 毫升之無水乙醇一起置於反應容器中，而且在保護 N₂ 氣氛下回流 7 小時。如此產生具有黃-綠色螢光之反應混合物，而且其在轉動蒸發器上蒸發。以層析術純化粗產物之後，得到 0.8 克(理論上 51%)之具有強烈之黃-綠色螢光之產物。

實例 4



0.6 克(2.8 莫耳)之新鮮再結晶 5,7-二氯-8-羥基喹啉與 0.97 克(2.8 莫耳)之二苯基硼酸酐及 250 毫升之無水乙醇置於反應容器中，而且在保護 N_2 氣氛下回流 4 小時。冷卻後數小時之後，黃色固體自溶液沈澱，其具有黃-綠色螢光；此固體可繼而由乙醇再結晶。乾燥後，得到 1 克(理論上 = 94.5%)之具有強烈黃色之固體。此固體顯示強烈之黃-綠色固態螢光，而且充份地溶於甲醇與乙醇。

請先聞清背面之注意事項再填寫本頁

卷之三

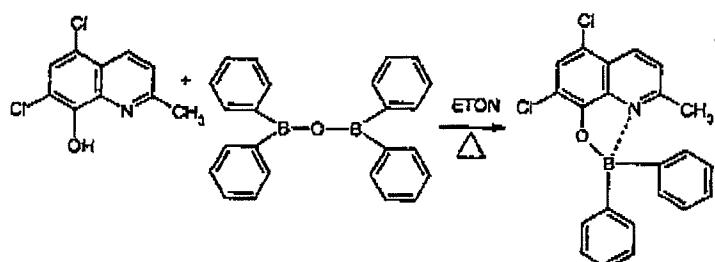
經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

419929

A7
B7

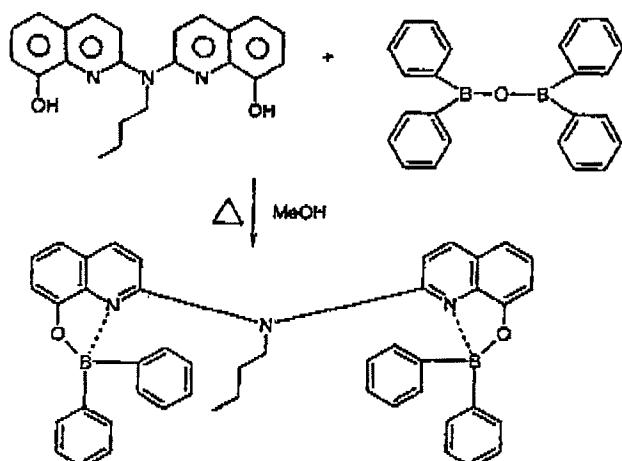
五、發明說明 (3)

實例 5



0.7 克(3.06 莫耳)之新鮮再結晶 5,7-二氯-8-羥基喹
啉與 1.06 克(3.06 莫耳)之二苯基硼酸酐及 100 毫升之無
水乙醇一起置於反應容器中，而且在保護 N_2 氣氛下回流 8
小時。黃色固體自溶液沈殿，其具有黃-綠色螢光；此固
體可繼而由乙醇再結晶。乾燥後，得到 1.19 克(理論上 =
91.7%)之具有強烈檸檬色之固體。此固體顯示強烈之黃-
綠色固態螢光，而且充份地溶於甲醇。

實例 6



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝
訂
綫

419929

A7
B7五、發明說明 (₃₂)

1 克(2.78 莫耳)之 N-丁基-2,2'-亞胺基-雙(8-羥基喹啉)與 1.92 克(5.56 莫耳)之二苯基硼酸酐及 50 毫升之無水甲醇一起置於反應容器中，而且在保護 N_2 氣氛下回流 5 小時。冷卻後數小時之後，檸檬黃色固體自溶液沈澱，其具有黃色螢光；此固體可繼而由乙醇再結晶。乾燥後，得到 1.29 克(理論上 = 67.5%)之具有強烈檸檬黃色之固體。此固體顯示強烈之黃色固態螢光，而且充份地溶於甲醇。

實例：物理部份實例 1

物質 B1 溶於二氯乙烷，使得在 10 毫米石英管中在 400nm 之吸收為 $A=0.05$ 。使用螢光光度計(Edinburgh, FS900)記錄此溶液之螢光光譜與激發光譜。激發光譜之最大值在 372nm，放射之最大值在 500 nm。物質在二氯乙烷中在 $\lambda_{ex}=372$ nm 之激發之量子產量為 $\Phi=0.34$ 。

實例 2

使用物質 B2 重複實例 1 之步驟。激發光譜之最大值在 372 nm，放射之最大值在 500 nm。物質在二氯乙烷中在 $\lambda_{ex}=372$ nm 之激發之量子產量為 $\Phi=0.40$ 。

實例 3

使用物質 B9 重複實例 1 之步驟。激發光譜之最大值在 410 nm，放射之最大值在 533 nm。物質在二氯乙烷中在 $\lambda_{ex}=410$ nm 之激發之量子產量為 $\Phi=0.094$ 。

實例 4

使用物質 B11 重複實例 1 之步驟。激發光譜之最大值

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

印

419929

A7

B7

五、發明說明 (33)

在 411 nm，放射之最大值在 536 nm。物質在二氯乙烷中在 $\lambda_{ex}=411$ nm 之激發之量子產量為 $\Phi=0.056$ 。

實例 5

使用依照本發明之物質 B1 製造有機光放射二極體 (OLED)。使用以下之步驟製造 OLED：

1. 清潔 ITO 基質

塗有 ITO 之玻璃 (Merck Balzers AG, FL, 料號 253 674 X0) 切成 50 毫米 x 50 毫米之片 (基質)。基質繼而在 3 強度% 之水性 Mukasol 溶液中在超音波浴清潔 15 分鐘。基質然後以蒸餾水清洗且離心旋乾。此清洗與乾燥步驟重複 10 次。

2. [®]Baytron P 層對 ITO 之塗佈

過濾 (Millipore HV, 0.45 μ m) 約 10 毫升之 1.3 強度% 之聚仲乙基二氧化噃吩/聚苯乙烯磺酸溶液 (Bayer AG, Baytron P)。基質繼而置於旋塗器上且過濾溶液散佈在基質之塗 ITO 側。基質上之過量溶液繼而藉由板在 500 rpm 之轉動 3 分鐘而旋開。已以此方式塗覆之基質然後在熱板上在 110°C 乾燥 5 分鐘。層之厚度為 60 nm (Tencor, Alphastep 200)。

3. 電洞導電層之塗佈

過濾 (Millipore HV, 0.45 mm) 5 毫升之 1 重量份之聚乙烯咔唑 (BASF, Luvican)，1 重量份之苯基胺 (Agfa-Gevaert，化合物 A1) 與 1 重量份之苯基胺 (Agfa-Gevaert，化合物 A2) 之 1.5 強度% 之二氯乙烷溶液，而且散佈在乾燥 Baytron P 層

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

419929

A7

B7

五、發明說明 (34)

上。基質上之過量溶液繼而藉由板在 800 rpm 之轉動 3 分鐘而旋開。已以此方式塗覆之基質然後在熱板上在 110°C 乾燥 5 分鐘。層之總厚度為 150 nm。

4. 光放射/電子注射層藉蒸汽沈積之塗佈

第三有機層，即，依照本發明之物質 B1，藉熱蒸汽沈積塗佈於以上兩個有機層。其在蒸汽沈積單位 (Leybold, Univex 350) 進行。蒸汽沈積單位在沈積步驟時之壓力為 10^{-3} Pa 及沈積速率為 2 Å/秒。3 個有機層之總厚度為 200 nm。

5. 金屬陰極藉蒸汽沈積之塗佈

金屬電極藉蒸汽沈積塗佈於有機層系統。為此目的，基質以有機層系統向下面向穿孔之罩而安置 (孔徑：5 毫米)。在 10^{-3} Pa 之壓力，元素 Mg 與 Ag 平行於兩個汽化槽而蒸發。Mg 之沈積速率為 28 Å/秒。蒸汽沈積金屬接點之厚度為 500 nm。

兩個有機 LED 之電極藉電引線連接電壓來源。正極連接 ITO 電極及負極連接 MgAg 電極。

可藉光二極體 (EG&G C30809E) 由僅 2.5 伏特之電壓偵測到電致發光。在 6 伏特之電壓，每單位面積之電流為 1 mA/ 平方公分及電致發光為易於見到的。顏色為 (x=0.302; y=0.4)。

實例 6

使用依照本發明之物質 B9 製造有機光放射二極體 (OLED)。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝
訂

419929

A7
B7

五、發明說明 (35)

OLED 之製造與電引動如實例 5 所述而進行，除了依照本發明之物質 B9 藉熱蒸汽沈積塗佈於前兩層作為第三有機層。其在蒸汽沈積單位(Leybold, Univex 350)進行。蒸汽沈積單位在沈積步驟時之壓力為 10^{-3} Pa 及沈積速率為 2 \AA/秒 。3 個有機層之總厚度為 200nm。

兩個有機 LED 之電極藉電引線連接電壓來源。正極連接 ITO 電極及負極連接 MgAg 電極。

可藉光二極體(EG&G C30809E)由僅 2.5 伏特之電壓偵測到電致發光。在 4 伏特之電壓，每單位面積之電流為 1 mA/ 平方公分及電致發光為易於見到的。顏色為 ($x=0.412$: $y=0.482$)。

實例 7

使用依照本發明之物質 B8 製造有機光放射二極體(OLED)。

OLED 之製造與電引動如實例 5 所述而進行，除了依照本發明之物質 B8 藉熱蒸汽沈積塗佈於前兩層作為第三有機層。其在蒸汽沈積單位(Leybold, Univex 350)進行。蒸汽沈積單位在沈積步驟時之壓力為 10^{-3} Pa 及沈積速率為 2 \AA/秒 。3 個有機層之總厚度為 200nm。

可藉光二極體(EG&G C30809E)由 4.5 伏特之電壓偵測到電致發光。在 12 伏特之電壓，每單位面積之電流為 1 mA/ 平方公分及電致發光為易於見到的。電致發光之顏色為淺綠藍色。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝訂線

419929

A5

B5

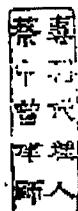
四、中文發明摘要 (發明之名稱： 含有硼螯合物之電致發光組件)

茲揭示一種包含基質，陽極，電致發光構件與陰極之電致發光組件，其中兩個電極至少之一在可見光譜區域為透明的，而且電致發光構件含有一或更多個區，其以指定之順序選自包括電洞注射區，電洞運輸區，電致發光區，電子運輸區，與電子注射區，其中存在之各區亦可呈現上述其他區之功能，其特徵為電致發光構件含有 8-羟基喹啉衍生物之硼錯合物。

(請先閱覽背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝訂線

英文發明摘要 (發明之名稱：)

Electroluminescent assemblies containing boron chelates

Electroluminescent assembly comprising a substrate, an anode, an electroluminescent element and a cathode, where at least one of the two electrodes is transparent in the visible spectral region and the electroluminescent element contains one or more zones selected from the group consisting of hole injection zone, hole transport zone, electroluminescent zone, electron transport zone and electron injection zone in the order specified, where each of the zones present may also assume functions of the other zones mentioned, characterized in that the electroluminescent element contains a boron complex of an 8-hydroxyquinoline derivative.

419929

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

1. 一種電致發光組件，其包含基質，陽極，電致發光構件與陰極，其中兩個電極中之至少一者在可見光譜區域為透明的，而且電致發光構件含有一或多個個區，其以指定之順序選自包括電洞注射區，電洞運輸區，電致發光區，電子運輸區，與電子注射區，其中存在之各區亦可呈現上述其他區之功能，其特徵為電致發光構件含有 8-羥基喹啉衍生物之硼錯合物。

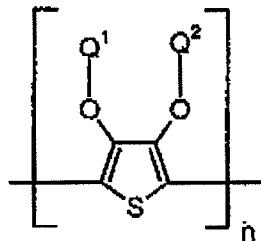
2. 根據申請專利範圍第 1 項之電致發光組件，其特徵為電洞注射區含有式(I)之未帶電或陽離子性聚噁吟

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

(I)、



其中

Q^1 與 Q^2 彼此獨立地表示氫，經取代或未取代(C_1-C_{20})-烷基， CH_3OH 或(C_6-C_{14})-芳基，或

Q^1 與 Q^2 一起表示 $-(CH_2)_m-CH_2-$ (其中 $m = 0$ 至 12，較佳為 1 至 5)，(C_6-C_{14})-亞芳基，及

n 表示 2 至 10,000 之整數，較佳為 5 至 5000。

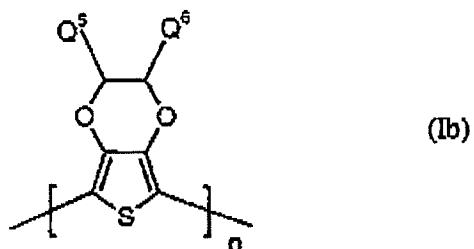
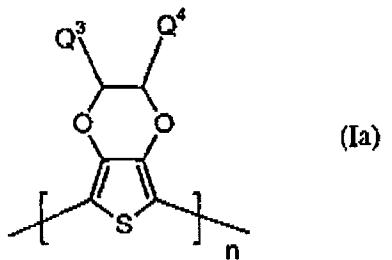
3. 根據申請專利範圍第 1 項之電致發光組件，其特徵為電洞注射區含有式(Ia)或(Ib)未帶電或陽離子性聚噁吟或其混合物

419929

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

一裝
訂

其中

Q^3 與 Q^4 彼此獨立地表示氫，經取代或未經取代(C_1-C_{18})-烷基，(C_2-C_{12})-烯基，(C_3-C_7)-環烷基，(C_7-C_{15})-芳烷基，(C_8-C_{10})-芳基，(C_1-C_{18})-烷氧基，或(C_2-C_{18})-烷氧基酯，及

Q^5 與 Q^6 彼此獨立地表示氫或(C_1-C_{18})-烷基，(C_2-C_{12})-烯基，(C_3-C_7)-環烷基，(C_7-C_{15})-芳烷基，(C_8-C_{10})-芳基，(C_1-C_{18})-烷氧基，或(C_2-C_{18})-烷氧基酯，其分別被至少一個磷酸基所取代，其中如果 Q^5 表示氫，則 Q^6 不為氫，反之亦同，及

n 表示 2 至 10,000 之整數。

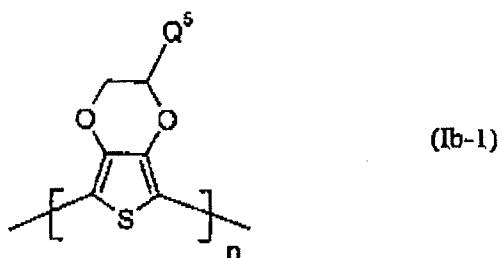
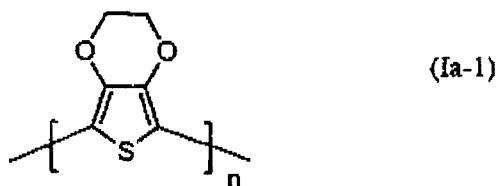
4. 根據申請專利範圍第 3 項之電致發光組件，其特徵為電

419929

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

洞注射區含有式(Ia-1)與(Ib-1)之陽離子性或未帶電聚
噁吩



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

其中

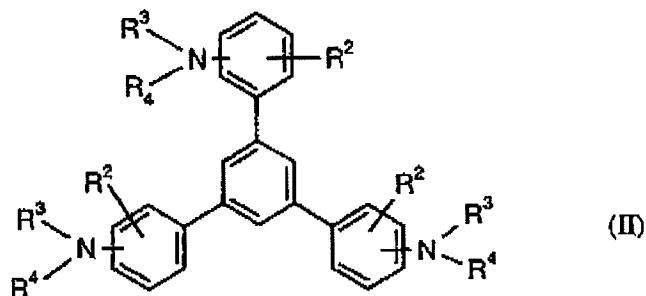
Q^s與n如申請專利範圍第3項中所定義者。

5. 根據申請專利範圍第1至4項中任一項之電致發光組件，其特徵為聚合羧酸及/或聚合磺酸之陰離子係以聚陰離子之形式存在。
6. 根據申請專利範圍第1項中任一項之電致發光組件，其特徵為聚苯乙烯磺酸及/或其鐵土金屬鹽係以相對離子之形式存在。
7. 根據申請專利範圍第1項之電致發光組件，其特徵為電洞注射及/或電洞運輸區含有通式(II)之芳族三級胺基化合物

419929

AB
B8
C8
D8

六、申請專利範圍



其中

R^2 表示氫，經取代或未經取代之烷基或鹵素，

R^3 與 R^4 彼此獨立地表示經取代或未經取代之(C_1-C_{10})-烷基，經烷氧基羧基取代之(C_1-C_{10})-烷基，或經取代或未經取代之芳基，芳烷基或環烷基。

8. 根據申請專利範圍第 2 項之電致發光組件，其特徵為，

在式(II)中，

R^2 表示氫或(C_1-C_6)-烷基，

R^3 與 R^4 彼此獨立地表示(C_1-C_8)-烷基，(C_1-C_4)-烷氧基羧基-(C_1-C_6)-烷基，或未經取代或經(C_1-C_4)-烷基及/或(C_1-C_4)-烷氧基取代之苯基，萘基，苯基-(C_1-C_4)-烷基，萘基-(C_1-C_4)-烷基，環戊基或環己基。

9. 根據申請專利範圍第 7 項之電致發光組件，其特徵為三級胺基化合物選自以下之化合物：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

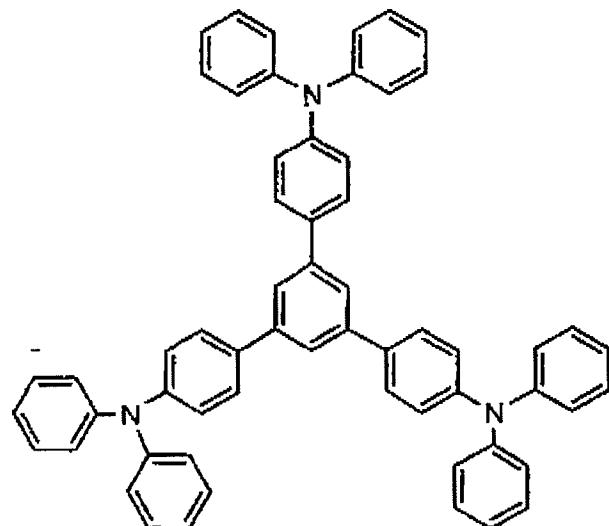
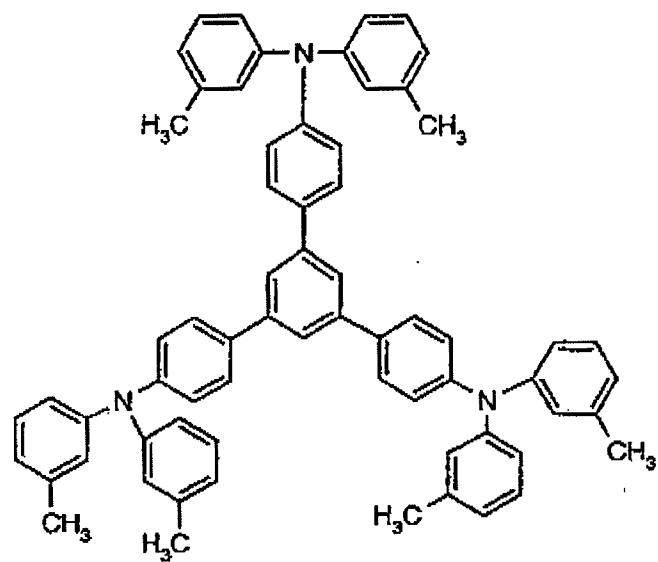
裝訂

419925

A8
E8
C8
D8

六、申請專利範圍

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)



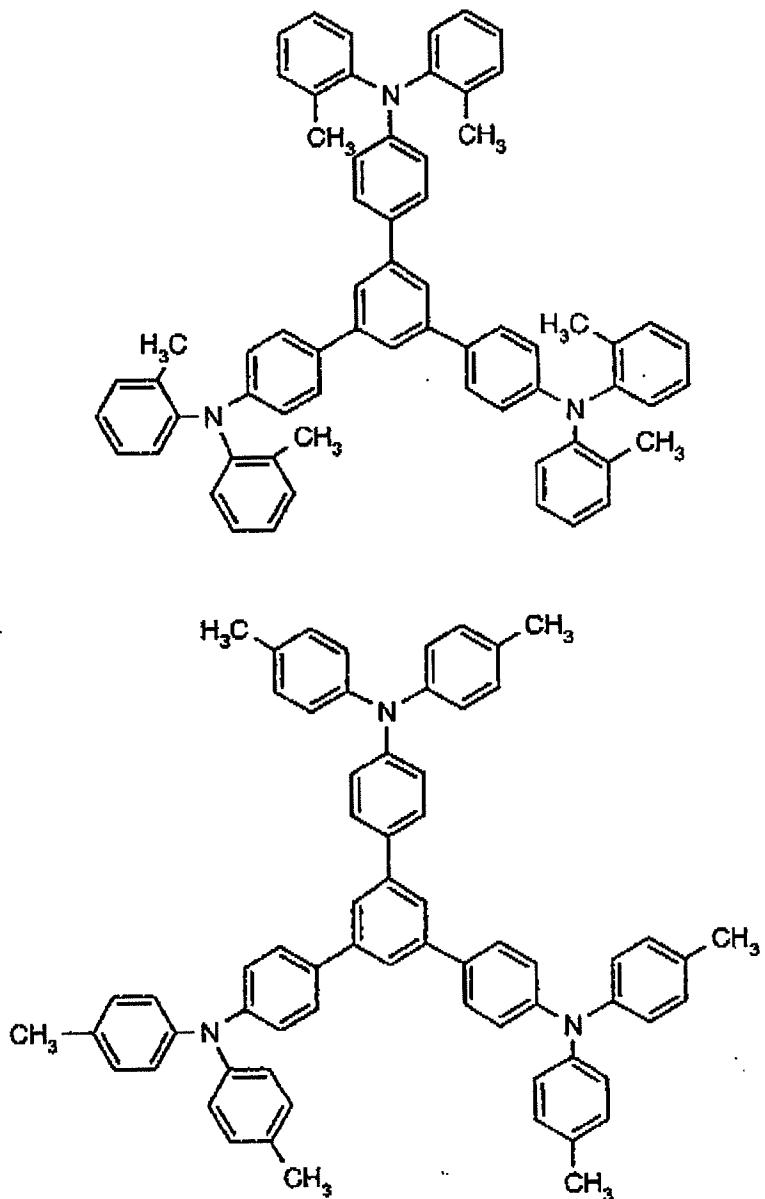
41952 3

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

「請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁

一裝一計



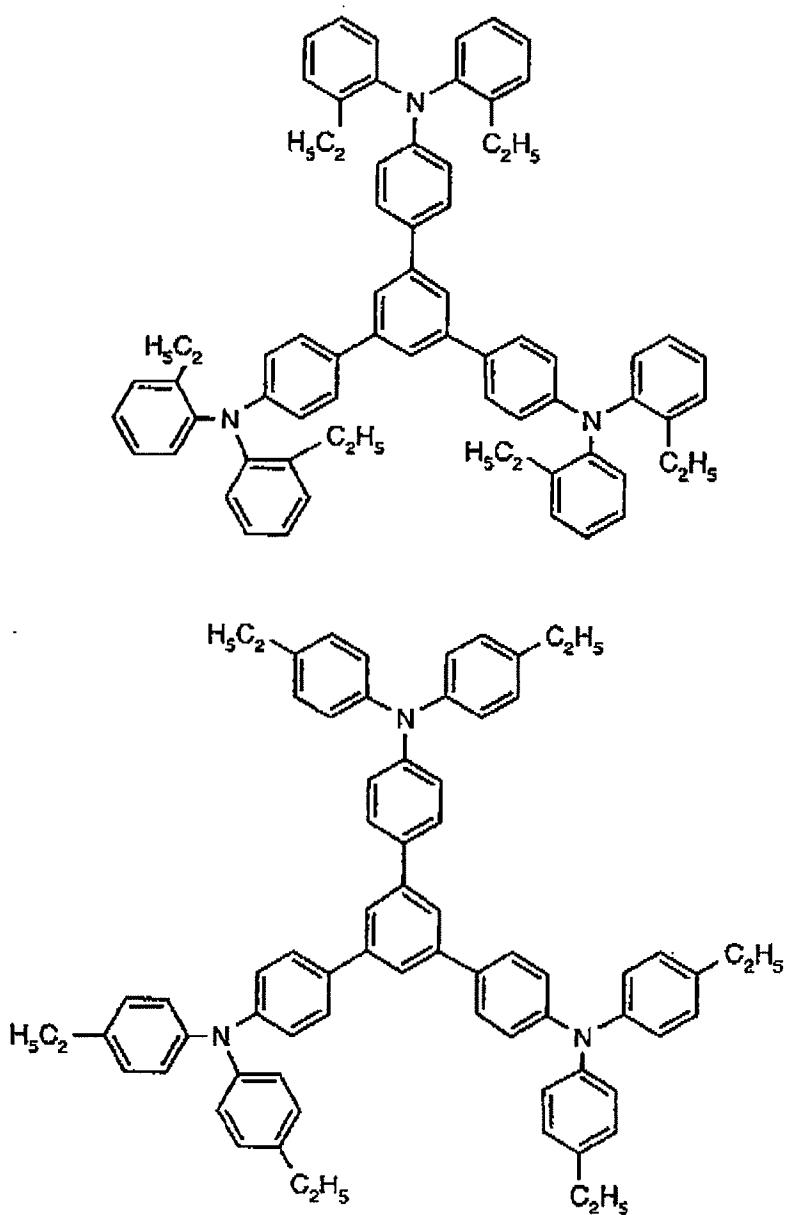
419929

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝訂



419929

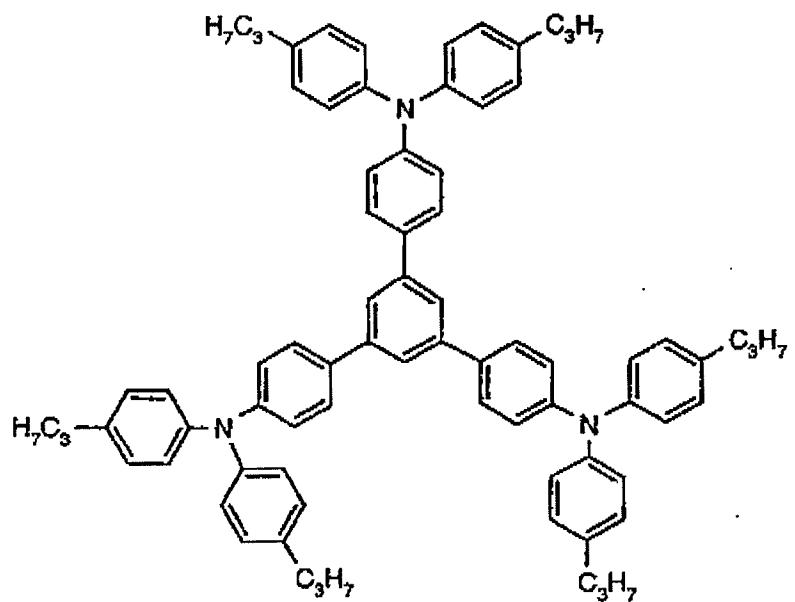
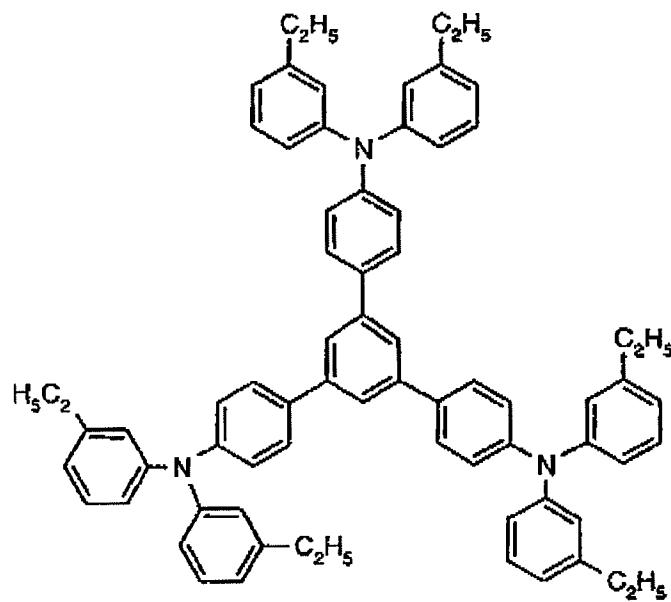
A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

一
裝

訂

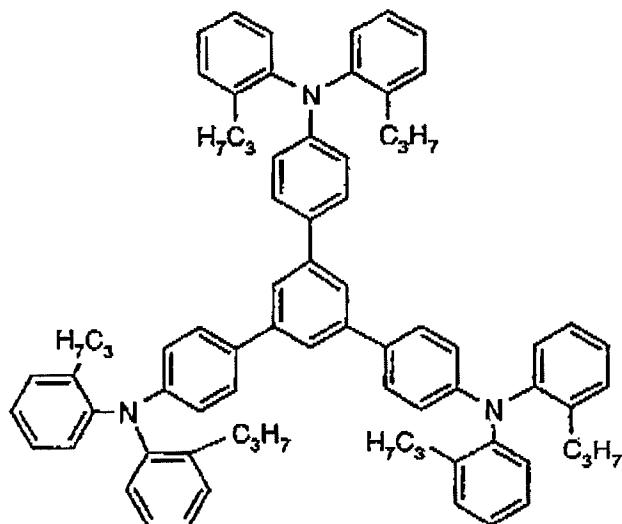
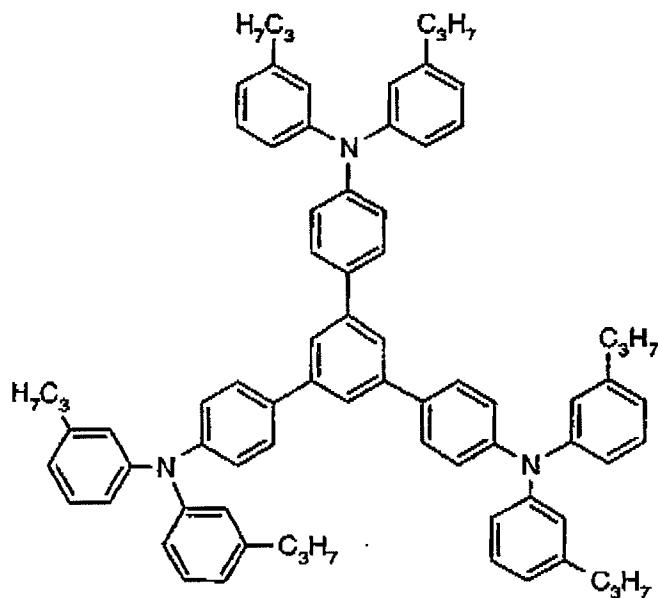


A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝
訂

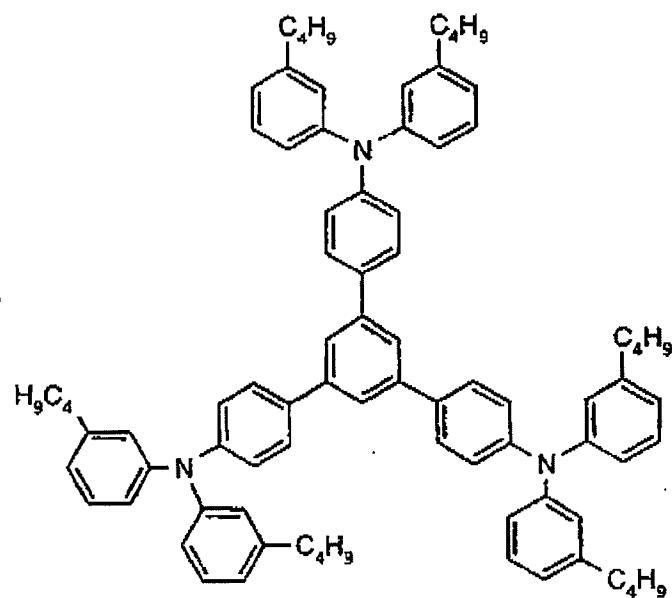
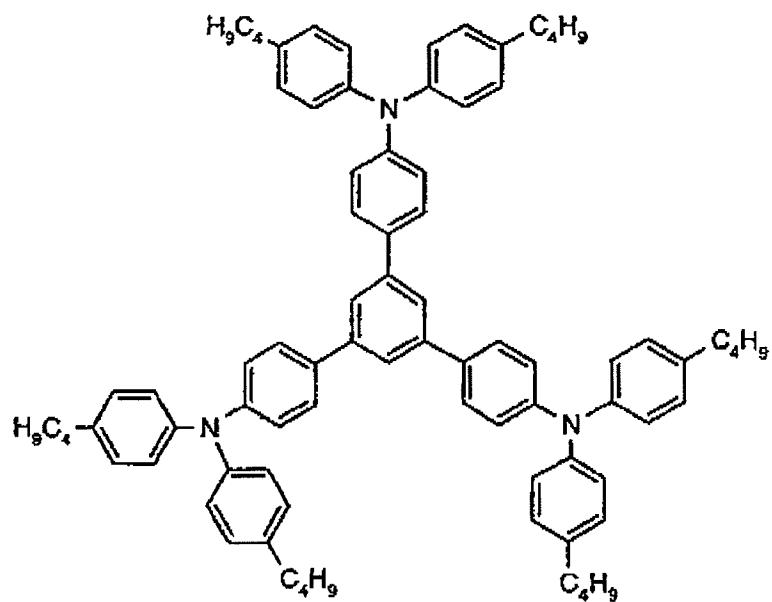


419929

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

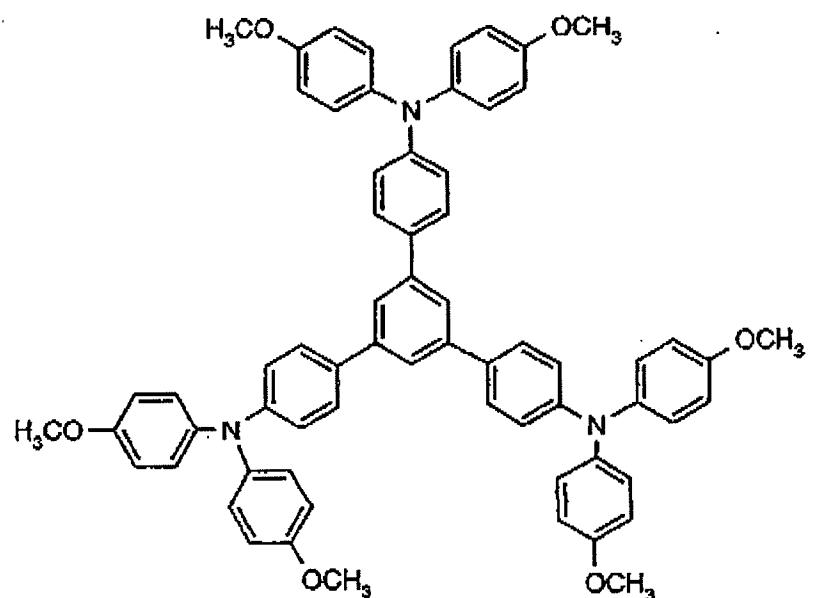
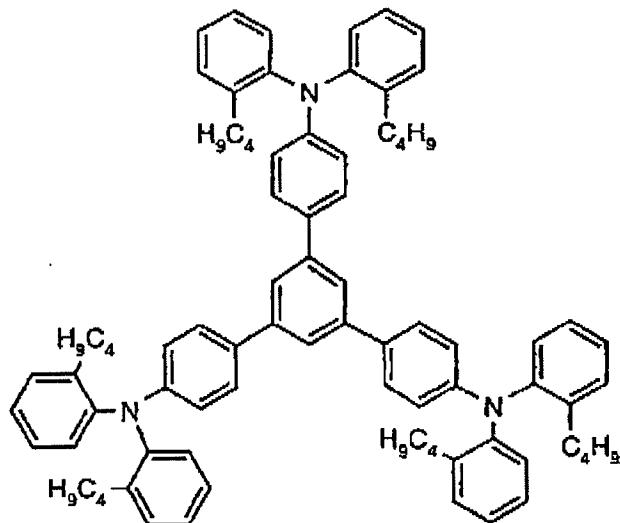
裝
訂
綫

419929

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

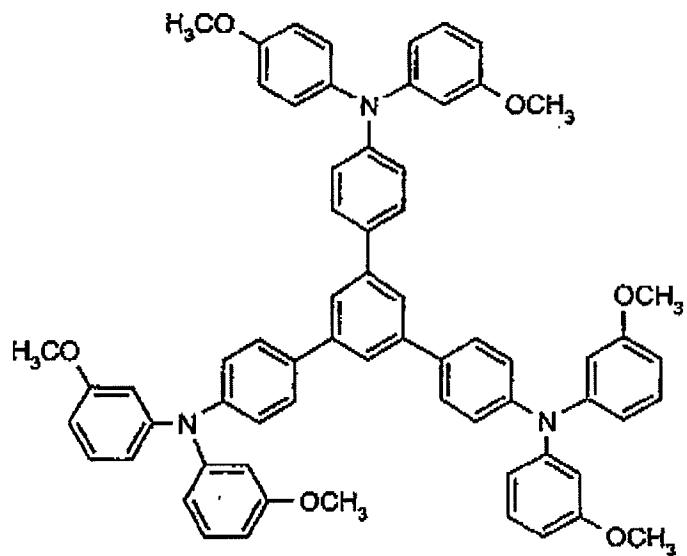
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)



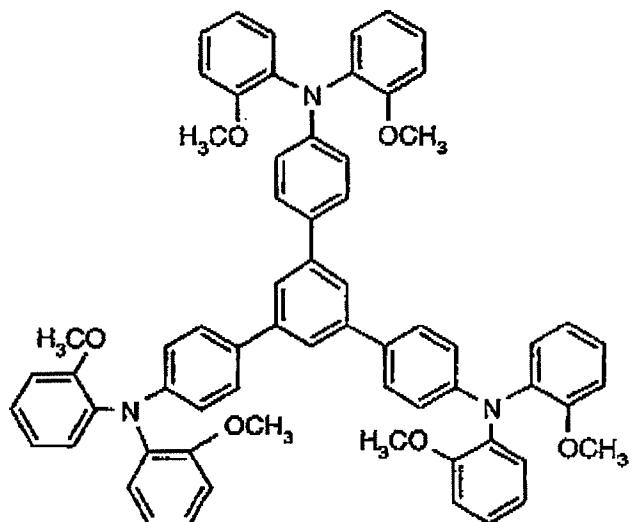
419929

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍



一葉先知謂葉之注者，新功再墮本原。



下
卷

၁၃၁

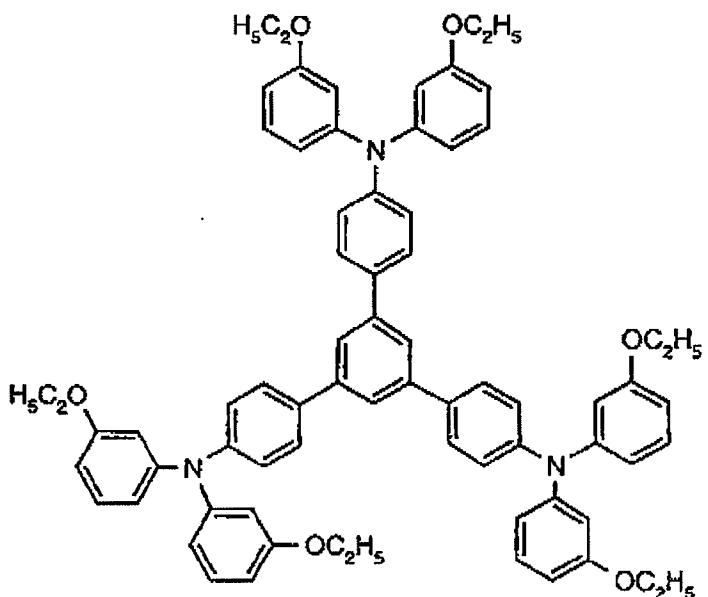
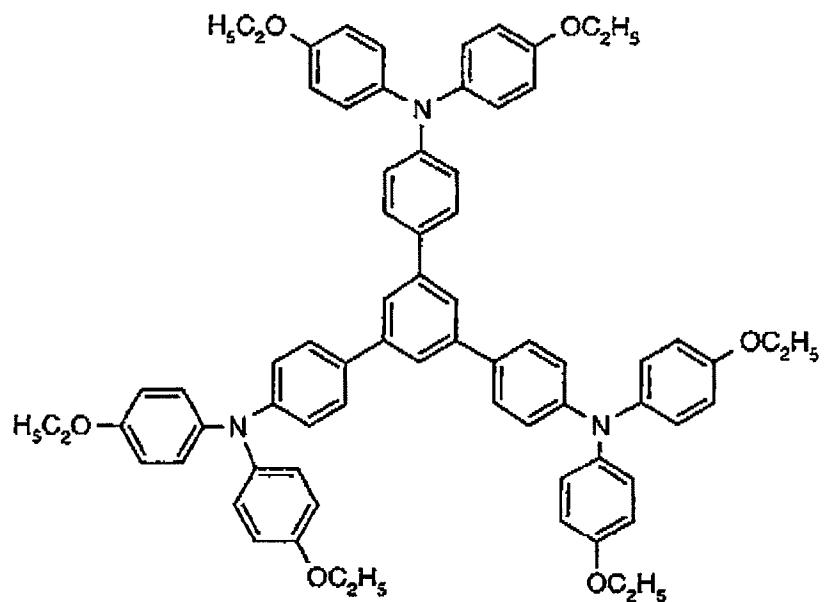
三

419929

AS
BS
CS
DS

六、申請專利範圍

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

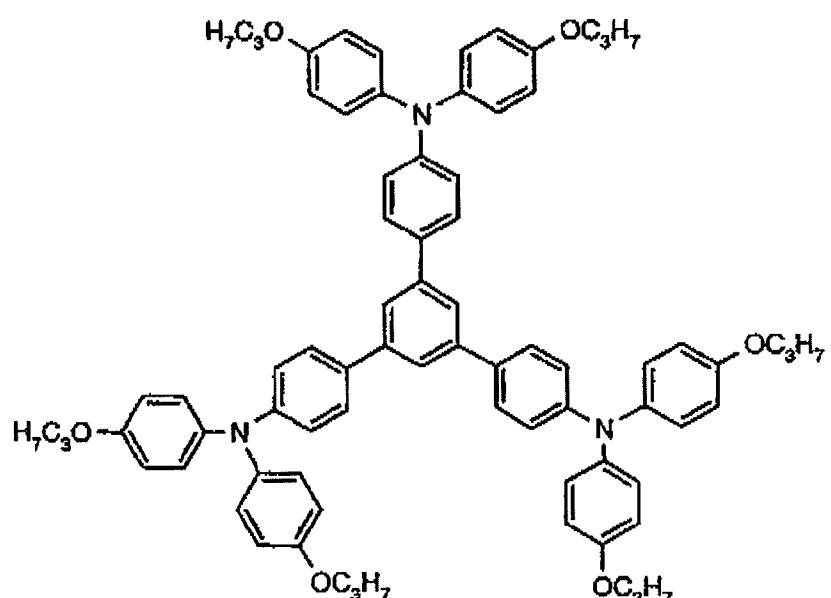
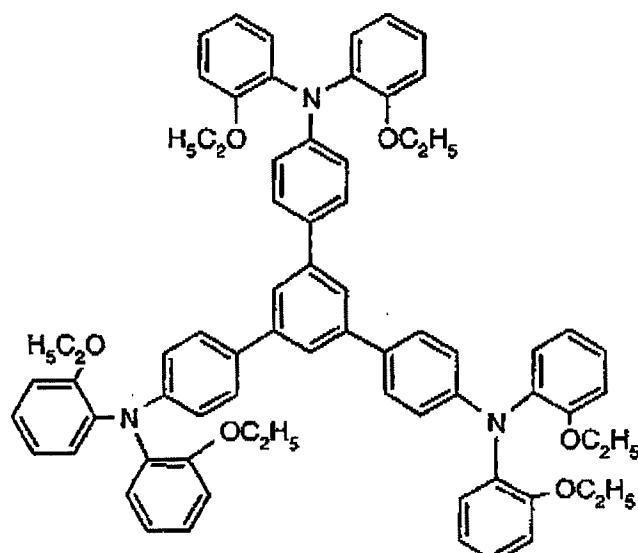
裝
訂
綫

A 19929

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

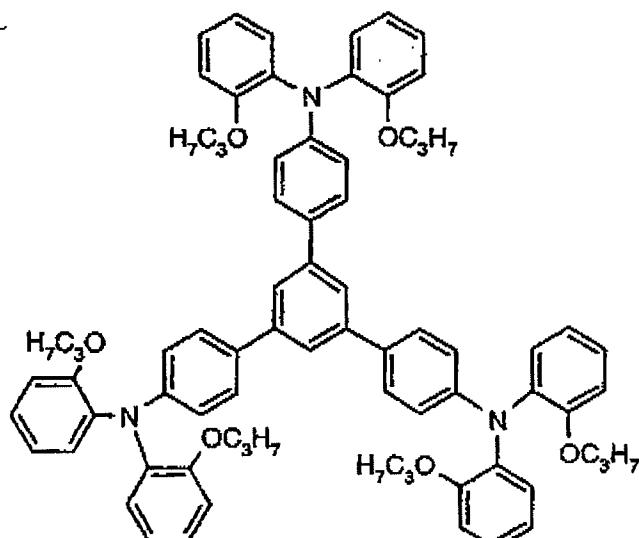
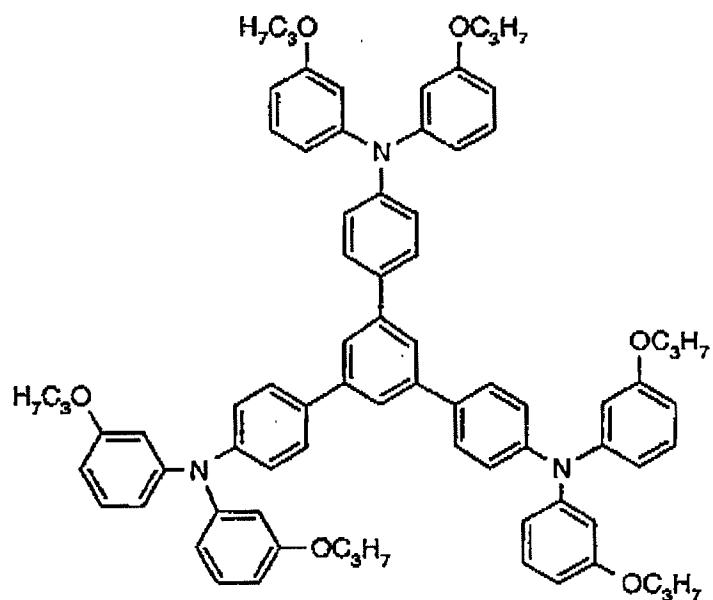
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝
訂
綫

A8
E8
C8
D8

六、申請專利範圍

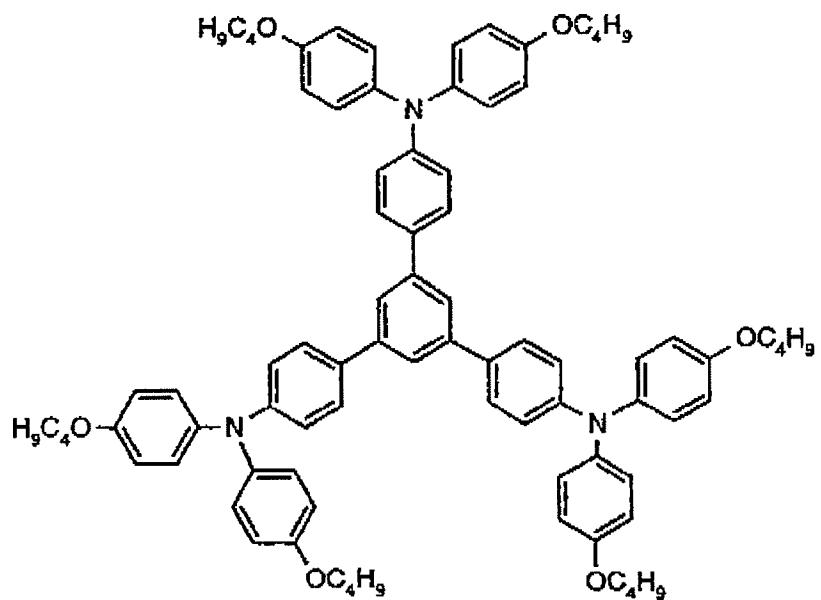
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)



419929

A8
B8
C8
D8

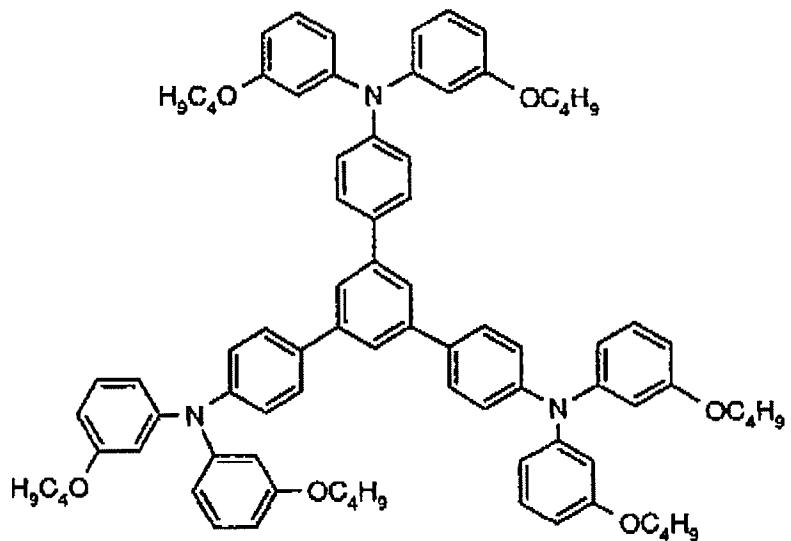
六、申請專利範圍



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

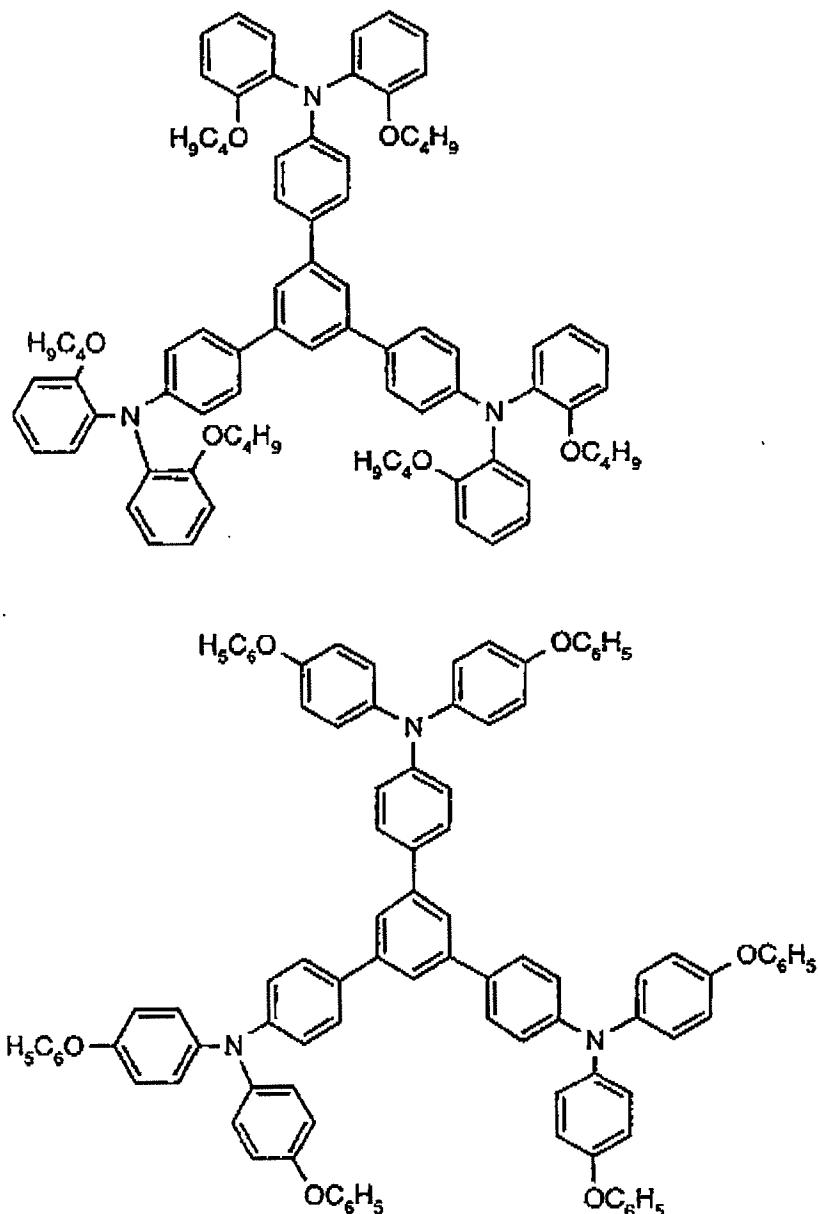


419929

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

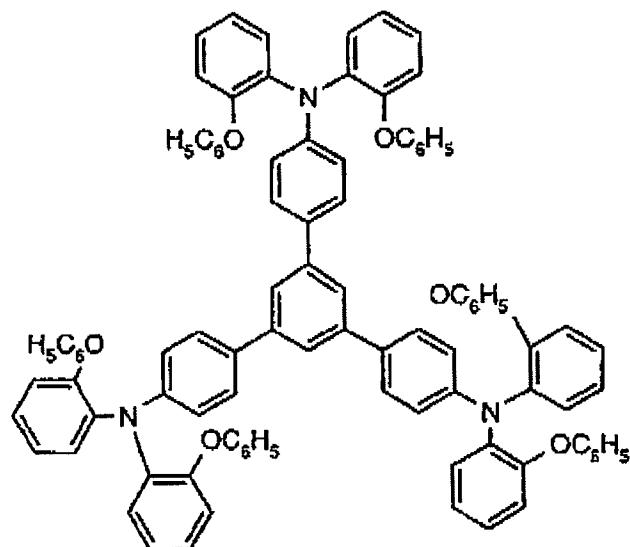
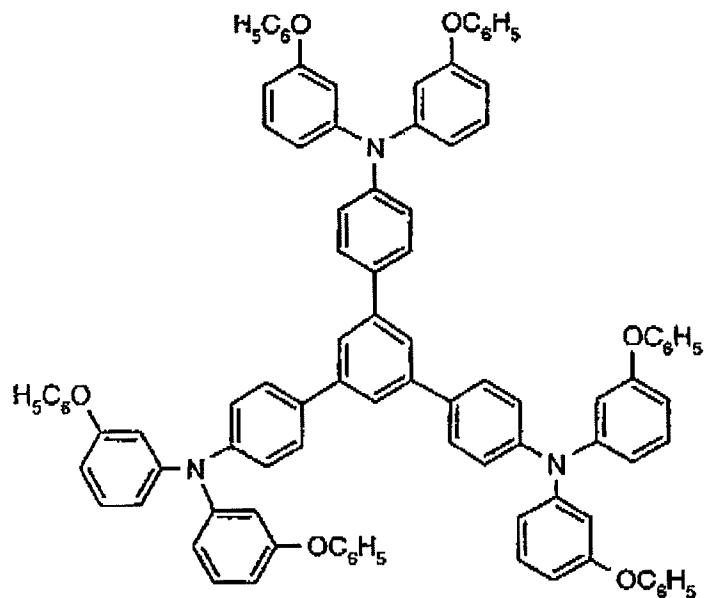


419929

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

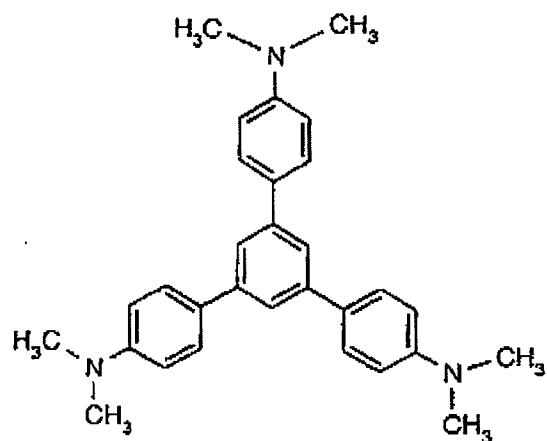
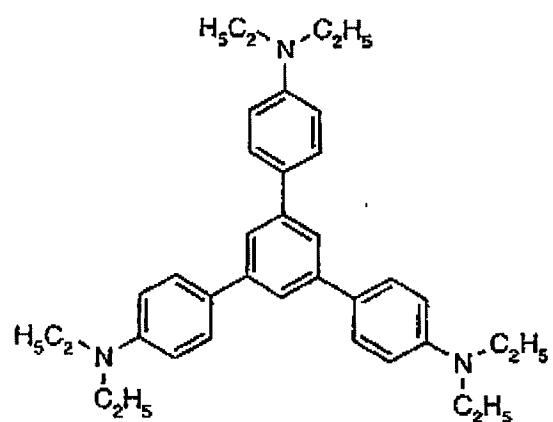
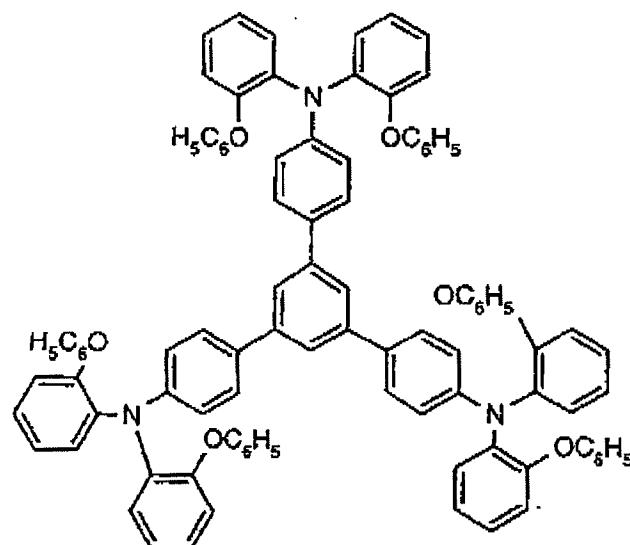
裝
訂
綫

41.992.9

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

諸州縣設置之法亦莫不以此為本而

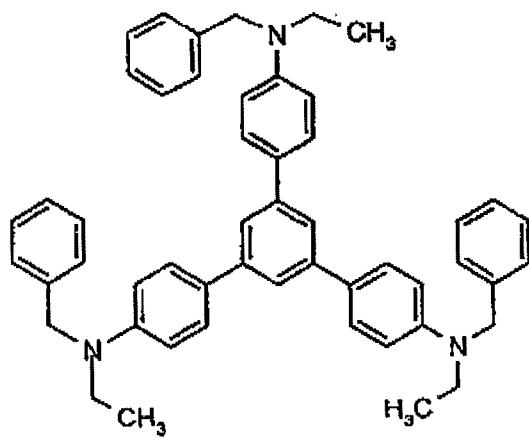
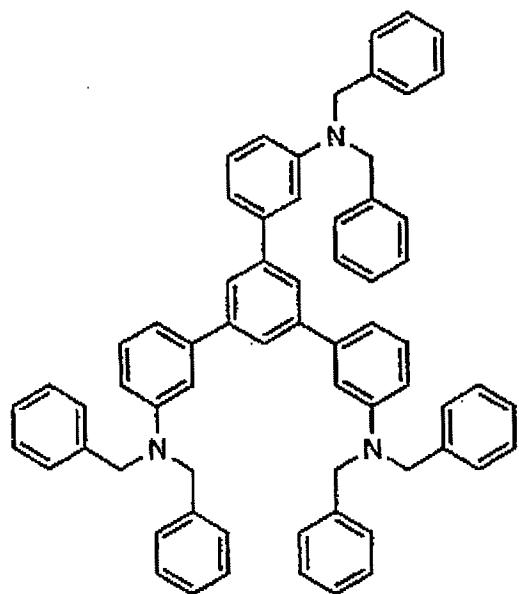


419929

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

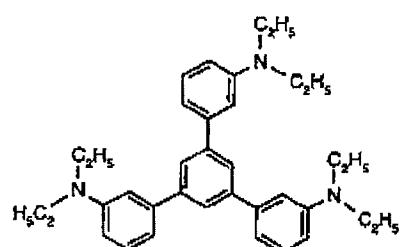
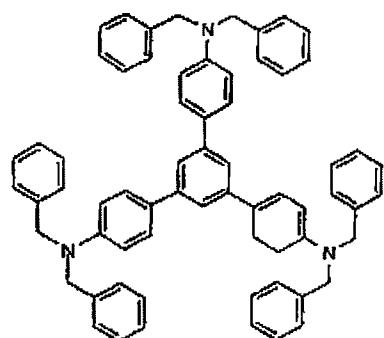


419929

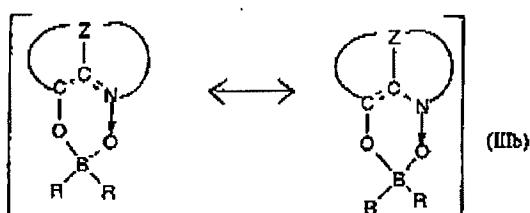
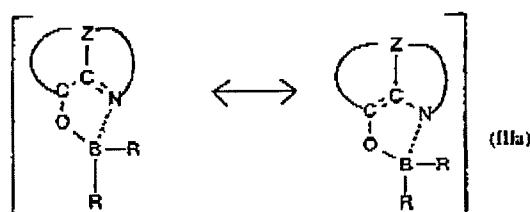
AB
BB
CB
DB

六、申請專利範圍

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)



10.根據申請專利範圍第 1 項之電致發光組件，其特徵為硼
錯合物為選自通式(IIIa)至(IIIg)化合物之化合物



其中

419929

A8
B8
C8
D8

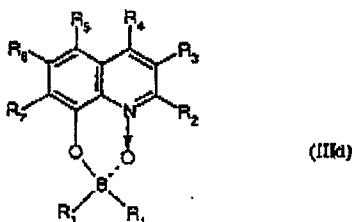
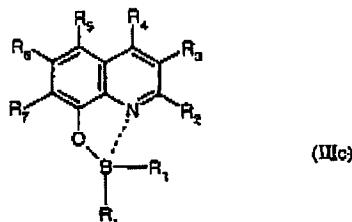
六、申請專利範圍

Z 表示可完成含有至少 2 個稠合環之結構的原子，

R 表示芳基或 F 原子

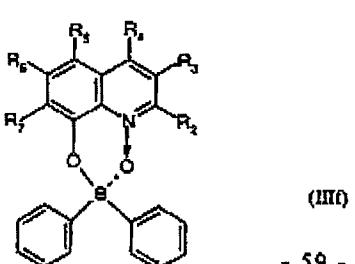
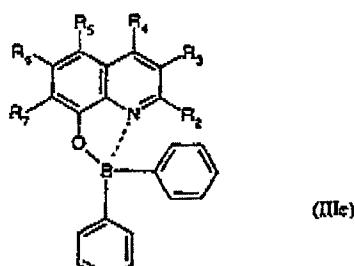
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝訂綫



其中

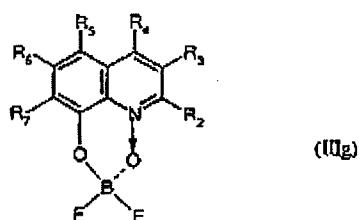
R₁ 表示經取代或未經取代之(C₆-C₁₀)-芳基或鹵素，
 R₂、R₃、R₄、R₅、R₆與 R₇彼此獨立地表示氫，經取代或未經取代之(C₁-C₁₈)-烷基或鹵素或礦醯胺基或氨基或經取代或未經取代之胺基，



419929

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍



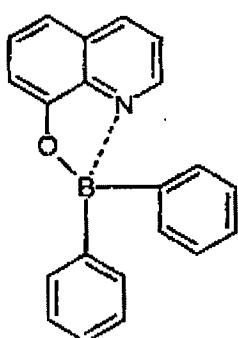
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

其中

R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 與 R_7 彼此獨立地表示氫，分支或未分
支(C_1-C_{12})-烷基，或氯或礦醯胺基團或氨基或經取代之
胺基。

- 11.根據申請專利範圍第1項之電致發光組件，其特徵為透
明黏合劑選自聚碳酸酯，聚酯碳酸酯，苯乙烯之共聚
物，聚砜，以含乙烯基單體為主之聚合物，聚烯烴，環
烯烴共聚物，及苯氧基樹脂中。
- 12.根據申請專利範圍第1項之電致發光組件，其特徵為硼
錯合物選自以下之化合物中：

B1)

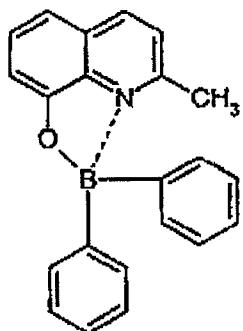


419929

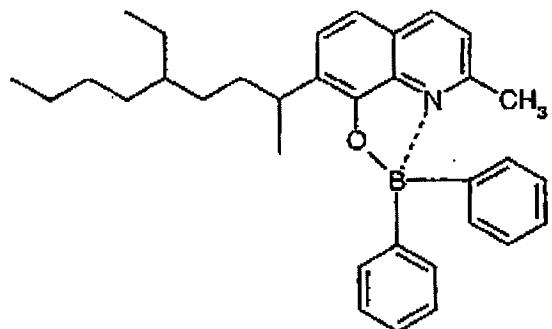
A8
E8
C8
D8

六、申請專利範圍

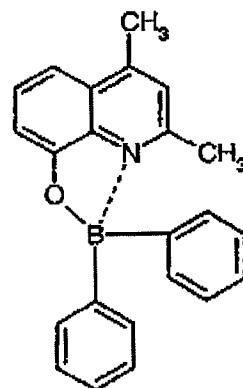
B2)



B3)



B4)



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

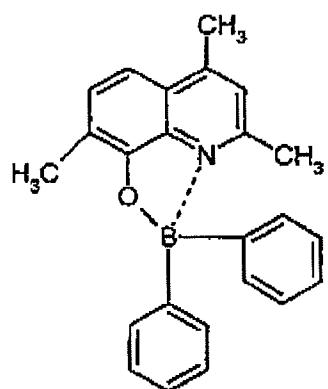
裝訂線

4. 之 25

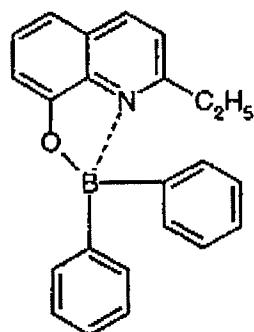
A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

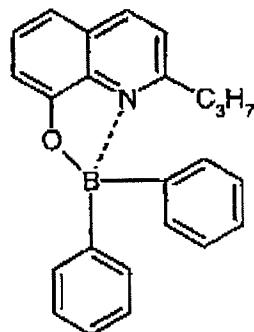
B5)



B6)



B7)



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

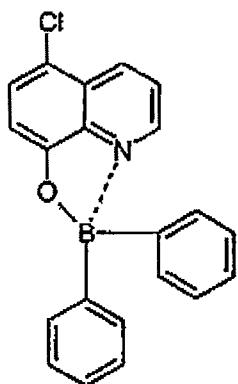
裝訂綫

419929

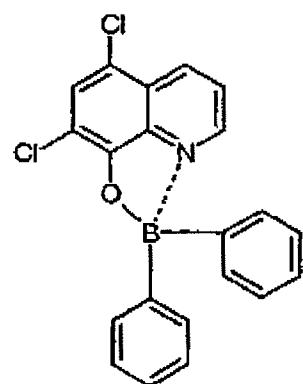
A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

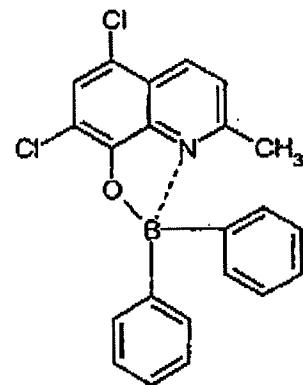
B8)



B9)



B10)



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

- 裝 -
- 訂 -
- 紙 -

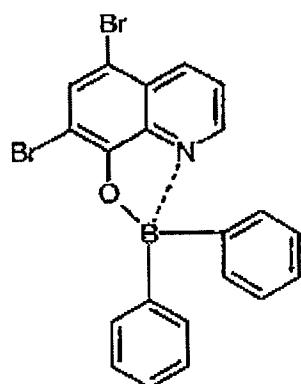
419929

A8
B8
C8
D8

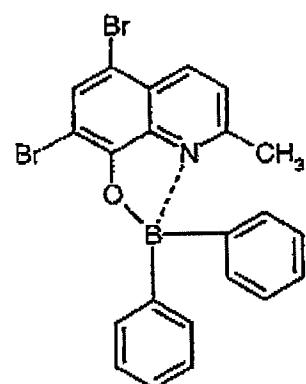
六、申請專利範圍

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

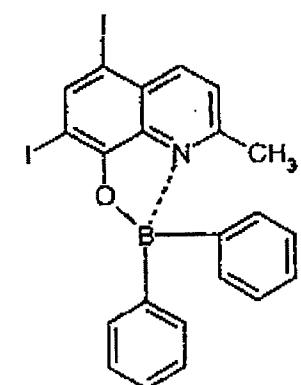
B11)



B12)



B13)

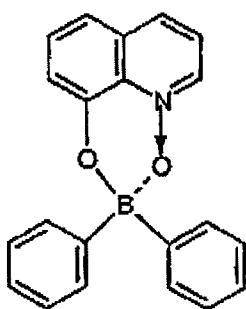


419929

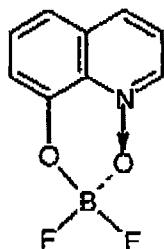
A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

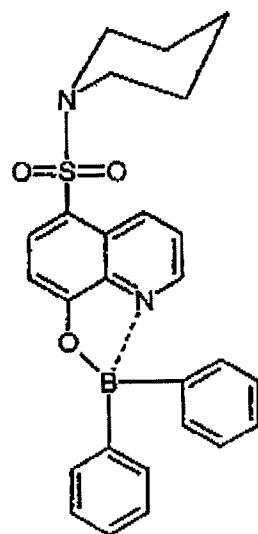
B14)



B15)



B16)



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

一
裝

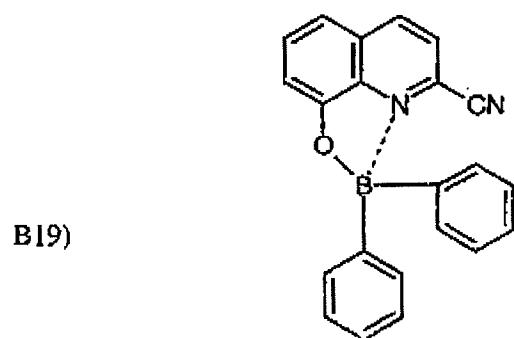
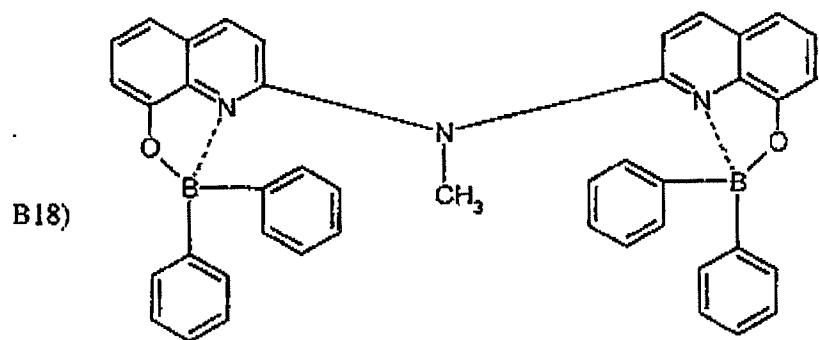
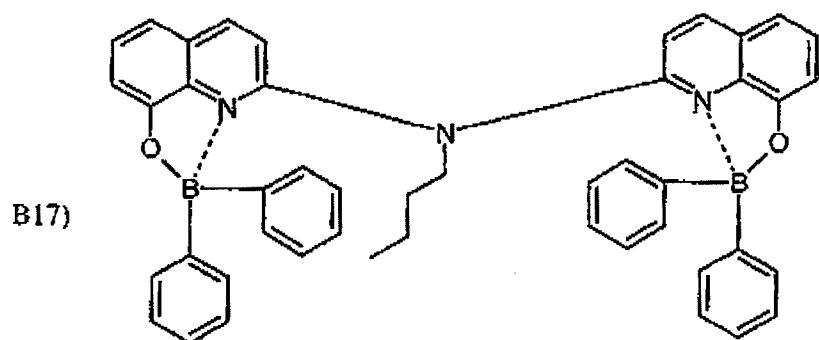
司

總

419929

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

一 裝 一 口 一 級